

SEPARAÇÃO DOS ISÓTOPOS DE URÂNIO PELO PROCESSO DA CENTRIFUGAÇÃO EM FASE GASOSA

IVO JORDAN



Tese de Concurso à Cátedra
n.º 27 — "Físico - Química e
Eletroquímica" — da Escola
Politécnica da Universidade de
São Paulo

1966

fl. 121

SEPARAÇÃO DOS ISÓTOPOS DE URÂNIO PELO PROCESSO DA
CENTRIFUGAÇÃO EM FASE GASOSA

ERRATA

<u>Página</u>	<u>em lugar de</u>	<u>leia-se</u>
2, linha 22	emprêgo os dispositivos	emprêgo de dispositivos
3, linha 25	fracamente	francamente
5, linha 32	em 1961 com	em 1963 com
45, linha 24	Isótopo	Isótopos
47, linha 26	temperatura na de	temperatura de
54, linha 33	osciloscópio	osciloscópio
63, linha 22	na extremidade do	as extremidades do
63, linha 51	pertendem	pertencem
66, linha 47	BRACKETT	BLACKETT
87, linha 15	matêm	mantêm
104, equação (107)	$p_o^2 - p''^2 = 22,9 L''$	$p_o^2 - p''^2 = 22,9 L''$

FT-121

DEDALUS - Acervo - EPBC



31200030738

539.14
J9630
ft e.2



I N D I C E

INTRODUÇÃO

1

CAPÍTULO I

FUNDAMENTOS TEÓRICOS DA SEPARAÇÃO DE ISÓTOPOS POR CENTRIFUGAÇÃO

1. Resumo da teoria da separação de isótopos estáveis	8
1.1. Fatores de separação	9
1.2. Equações fundamentais da separação de isótopos	11
1.3. Potencial de separação	15
1.4. Estudo da cascata quadrada	17
2. Teoria geral da separação de isótopos por centrifugação	19
2.1. Fator de separação de equilíbrio de uma centrífuga	19
2.2. Tipos de centrífuga a gás	22
2.3. Equação diferencial fundamental da centrífuga	22
2.4. Potencial de separação da centrífuga	24
3. Teoria da centrífuga contracorrente	26
3.1. Equação diferencial parcial da centrífuga contracorrente	27
3.2. Equação do enriquecimento da centrífuga contracorrente	28
3.3. Potencial de separação da centrífuga contracorrente	31
3.4. A centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica	32
3.5. Estudo do perfil de escoamento	33

CAPÍTULO II

HEXAFLUORETO DE URÂNIO UTILIZADO

1. Transferência e purificação de hexafluoreto de urânio	38
2. Descrição do sistema de transferência e purificação de UF ₆	39
3. Componentes e montagem do sistema de transferência e purificação de UF ₆	44
4. Transferência e purificações de hexafluoreto de urânio realizadas	48

CAPÍTULO III

APARELHAGEM E MÉTODOS DE MEDIDA

1. Descrição da centrífuga contracorrente, modelo ZG3	51
2. Descrição do sistema de introdução e retirada de gás da centrífuga	55
3. Medida da vazão de hexafluoreto de urânio	60
4. Descrição do espectrômetro de massas	70
5. Medida da relação de abundância dos isótopos de urânio	73

CAPÍTULO IV

EXPERIÊNCIAS DE SEPARAÇÃO REALIZADAS

1. Operação e comportamento mecânico da centrífuga ZG3-A	79
2. Modo de realização das experiências de separação	88
3. Experiências preliminares	90
4. Experiências de enriquecimento estático	91
5. Experiências de enriquecimento dinâmico	94

CAPÍTULO V

DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÕES

1. Separação dos isótopos de urânio em refluxo total	99
2. Separação dos isótopos de urânio em condições de produção	103
3. Potencial de separação da centrífuga na separação dos isótopos de urânio	111
4. Conclusões	114

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

117

INTRODUÇÃO

A idéia da possibilidade de separar os componentes de uma mistura isotópica por meio de um campo centrífugo foi sugerida por LINDE MANN e ASTON (1) em 1919. Todavia, as primeiras experiências realizadas neste sentido por JOLY e POOL (2) no ano seguinte com centrífugas bastante rudimentares não lograram alcançar o êxito desejado. Somente mais tarde, em 1939, após a construção das centrífugas a gás, realizada por BEAMS (3) na Universidade de Virgínia, tornou-se possível a separação de isótopos estáveis, como os de bromo e de cloro, com resultados plenamente satisfatórios (4).

O estudo da separação de isótopos, por centrifugação em fase gasosa, começou realmente a despertar interesse teórico e prático, quando, durante a Segunda Guerra Mundial, surgiu o problema da produção em larga escala de urânio enriquecido de seu isótopo ^{235}U . Nos Estados Unidos foram então desenvolvidas, por BEAMS e colaboradores (5), as centrífugas com evaporação, concorrente e contracorrente, destinadas à separação dos isótopos de urânio, na forma de hexafluoreto, enquanto que, sob a orientação de COHEN (6), pesquisadores norte-americanos e britânicos estabeleceram as bases da teoria geral da separação de isótopos estáveis para estes três tipos de centrífugas. Tendo-se verificado, nestes estudos, que a centrífuga contracorrente, originalmente proposta por UREY (7), apresentava a maior eficiência de separação, centrífugas deste tipo foram construídas em 1941 por empresas norte-americanas e montadas numa instalação piloto, na qual funcionaram com sucesso em relação ao grau de separação previsto pela teoria (8). Ao mesmo tempo, na Alemanha, GROTH e colaboradores (9), visando também a separação dos isótopos de urânio, iniciaram a construção de centrífugas a gás, baseadas no princípio adotado por BEAMS, enquanto que MARTIN e KUHN (10) desenvolviam uma teoria semelhante à de COHEN para a centrífuga a gás de contracorrente estabelecida por convecção térmica.

Os trabalhos teóricos e experimentais realizados pelos pesquisadores norte-americanos permitiram que, ainda durante a Segunda Guerra Mundial, fosse elaborado nos Estados Unidos o projeto de uma instalação de separação dos isótopos de urânio por centrifugação, com a finalidade de produzir em larga escala urânio enriquecido em 90% de ^{235}U (5). Todavia, nesta época, os estudos da separação de isótopos por difusão gasosa se encontravam em fase mais adiantada do que os de centrifugação. Por esta razão, decidiu-se abandonar por completo a execução do projeto de centrifugação, embora tivesse sido estimado que o custo de sua instalação seria ligeiramente inferior ao da instalação de difusão gasosa (5). Resultou desta decisão que, nos Estados Unidos, durante mais de 15 anos, não se registrou praticamente nenhum progresso no desenvolvimento de centrífugas para a separação de isótopos, permanecendo ainda interditada à publicação dos trabalhos realizados neste setor durante a Segunda Guerra Mundial.

Por outro lado, terminadas as hostilidades, GROTH e colabora-

dores (11, 12, 13) continuaram, na Alemanha, o desenvolvimento deste processo de separação de isótopos, chegando a construir, até 1959, no Instituto de Físico-Química da Universidade de Bonn, três modelos de centrífugas contracorrentes cada vez mais aperfeiçoadas, que designaram por UZIIIB, ZG3 e ZG5, respectivamente. Com a centrífuga, modelo UZIIIB, foi realizada em 1957 a separação dos isótopos de urânio (11, 14), tendo-se obtido resultados plenamente satisfatórios. As centrífugas, modelo ZG3, foram adquiridas pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (15), enquanto que a centrífuga, modelo ZG5, também foi utilizada por GROTH e colaboradores (16, 17) para a realização das experiências de separação de isótopos de argônio e de urânio. Pretendiam estes pesquisadores construir ainda centrífugas de maiores dimensões do que as do modelo ZG5, assim como instalar uma cascata de separação de isótopos de urânio composta de 7 centrífugas (13, 18); todavia, os dados experimentais relativos a estas unidades e à cascata de separação projetada não foram publicados.

As centrífugas desenvolvidas por BEAMS e GROTH se baseiam no mesmo princípio de construção, a saber, um rotor cilíndrico e óco em movimento de rotação e suspenso entre dois tubos finos, de alta elasticidade, que funcionam como o eixo de rotação vertical e permitem a introdução e retirada do gás da centrífuga. O rotor, acionado por um motor preso ao tubo superior, gira livremente com elevada frequência e a estabilização do movimento de rotação é obtida mediante o emprego os dispositivos especiais, os mancais de amortecimento. Com exceção de detalhes de natureza mecânica e das dimensões, as centrífugas de BEAMS e de GROTH diferem entre si pela maneira segundo a qual é produzida a contracorrente gasosa no interior do rotor. Assim, enquanto que nas centrífugas americanas, esta contracorrente é obtida por meio da ação de bombas externas, nas alemãs, a contracorrente é estabelecida por convecção térmica, conforme previa a teoria elaborada por MARTIN (19).

Na União Soviética, durante o período compreendido entre 1946 e 1954, um grupo de pesquisadores alemães e soviéticos, sob a orientação dos cientistas alemães STEENBECK, SCHEFFEL e ZIPPE, também se dedicou ao desenvolvimento de centrífugas a gás para a separação dos isótopos de urânio (20). Inicialmente, este grupo construiu centrífugas longas, no interior das quais a contracorrente gasosa era produzida por meio de um disco estacionário e pela ação de forças de Coriolis, o comportamento desta contracorrente tendo sido analisado em detalhes por STEENBECK (21). Mais tarde, em 1954, ZIPPE (20) desenvolveu ainda na União Soviética uma centrífuga curta, baseada num princípio de construção inteiramente diferente do utilizado por BEAMS e GROTH. Em época posterior ao ano de 1954, nenhuma informação foi tornada pública em relação ao desenvolvimento das centrífugas soviéticas. No próprio trabalho de ZAVORONROV e SAKODYNSKIJ (22), do Instituto Karpov de Físico-Química da Universidade de Moscou, publicado em 1962, que apresenta as diretrizes adotadas no desenvolvimento dos diversos processos de separação de isótopos estáveis e cita os trabalhos de GROTH, nenhuma referência é feita em relação às realizações soviéticas no campo da separação de isótopos por centrifugação.

As centrífugas curtas construídas por ZIPPE (20) apresentam um rotor cilíndrico e óco apoiado sobre uma agulha flexível, que atua como eixo de rotação vertical. O acionamento do rotor é realizado na sua tampa inferior e o movimento do rotor, que se dá com elevada frequência de rotação, é estabilizado, de um lado, através da rotação da agulha no interior de uma cavidade existente numa chapa elásticamente centrada e, de

outro lado, graças à presença de um amortecedor magnético na parte superior do rotor. Introduzido o gás através do eixo tubular superior, sua retirada do rotor é efetuada por meio de tubos de Pitot concêntricos, sendo um destes tubos responsável pela produção da contracorrente no interior da centrífuga, graças à redução da velocidade tangencial do gás. Estas centrífugas conduziram a resultados plenamente satisfatórios na separação dos isótopos de urânio, apresentando, na opinião de ZIPPE, nitidas vantagens em relação aos outros tipos de centrífugas mencionados e também em relação ao processo da difusão gasosa.

A importância da centrífuga a gás como um meio capaz de fornecer urânio enriquecido para a produção de energia de origem nuclear em reatores de potência, foi plenamente apreciada na Segunda Conferência Internacional das Nações Unidas sobre os Usos Pacíficos na Energia Atômica, realizada em Genebra, em 1958. Neste congresso foram apresentados três trabalhos sobre o processo de centrifugação por BEAMS (23), GROTH (12) e KISTEMAKER (24), respectivamente. O primeiro destes trabalhos relata parte do estudo efetuado por BEAMS e colaboradores durante a Segunda Guerra Mundial e se refere exclusivamente à verificação da teoria de COHEN (6) para os três tipos de centrífugas anteriormente mencionados. O segundo trabalho apresenta os progressos realizados por GROTH e colaboradores na construção da centrífuga, modelo ZG3, enquanto que no terceiro trabalho são analisadas por KISTEMAKER e colaboradores as possibilidades econômicas do processo de centrifugação para pequenos enriquecimentos de urânio, chegando-se neste caso a resultados fracamente favoráveis quando comparados com os do processo da difusão gasosa.

Em vista dos êxitos alcançados pelos pesquisadores europeus e das potencialidades econômicas do processo, em 1958 a Comissão Norte-Americana de Energia Atômica decidiu retomar o estudo da separação dos isótopos de urânio por centrifugação em fase gasosa, considerando-o suficientemente promissor para a execução de um amplo programa de desenvolvimento. Dentro deste programa, ZIPPE (25) reproduziu, de 1958 a 1960, na Universidade de Virgínia e sob a supervisão de BEAMS, as centrífugas curtas que havia construído na União Soviética. Estas centrífugas forneceram excelentes resultados, quer do ponto de vista mecânico, quer em relação à potência consumida, que é de apenas 10% da consumida no processo da difusão gasosa, embora o custo de separação ainda fosse cerca de 20 vezes mais elevado do que o deste processo, para um preço unitário da centrífuga de US \$ 1000.

Além de incentivar estas pesquisas fundamentais, o programa de desenvolvimento, elaborado pela Comissão Norte-Americana de Energia Atômica, previa a concessão de maiores estímulos à iniciativa privada norte-americana para a produção industrial de centrífugas destinadas ao enriquecimento isotópico de urânio. Neste sentido, até o ano de 1960, as firmas "General Electric Co.", "Thor-Westcliffe Research, Inc." e "Decker Corporation" haviam mostrado um grande interesse em participar deste ramo de atividades (26, 27).

Na República Federal Alemã, a firma "Degussa" manifestou o mesmo interesse pela construção de centrífugas, a qual iniciou em 1959 sob a orientação de ZIPPE (25). Esta firma patenteou em 1960 uma centrífuga contracorrente curta, que apresenta características mecânicas e consumo de potência semelhantes às das máquinas construídas por ZIPPE nos Estados Unidos, porém pode ser manufaturada industrialmente a um preço de US \$ 235. Para o enriquecimento de urânio, esta centrífuga conduz a um custo de separação aproximadamente igual ao dobro do correspondente

ao processo da difusão gasosa, existindo porém a possibilidade de reduzir este custo mediante o aumento da eficiência de separação da máquina (25, 27).

Os trabalhos de pesquisa e de desenvolvimento de centrífugas à gás, realizados durante a última década, convenceram finalmente a Comissão Norte-Americana de Energia Atômica que, num futuro próximo, o processo da centrifugação iria competir economicamente com o da difusão gasosa no caso do enriquecimento isotópico do urânio. Contribuiu para esta mudança de atitude o trabalho de ZIPPE (28), publicado em princípios de 1960, no qual uma comparação bastante objetiva é efetuada entre os dois processos de separação. Temendo, então, a disseminação da tecnologia do processo de centrifugação entre países não possuidores de armamentos nucleares e sentindo-se, ainda, obrigada a proteger o investimento governamental de 3 bilhões de dólares nas usinas de difusão gasosa contra a possível concorrência de material físsil mais barato, esta entidade decidiu, em meados de 1960, proibir a publicação de qualquer informação técnica ou operacional relativa às centrífugas em desenvolvimento nos Estados Unidos (27). Idêntica proibição foi estabelecida, meses mais tarde, na República Federal Alemã e na Holanda (29). Nestas condições a partir de fins de 1960 não se conhece nada acerca no progresso que o estudo desse processo de separação de isótopos vem alcançando nestes três países.

Tomada a decisão de interditar a divulgação dos aspectos tecnológicos do processo de centrifugação, a Comissão Norte-Americana de Energia Atômica ainda ampliou consideravelmente suas atividades neste campo, tendo elaborado, em 1961, um programa ainda mais extenso do que os anteriores, o qual obedece às seguintes diretrizes: (1) manutenção, sob contrato, das pesquisas básicas que vinham sendo realizadas na Universidade de Virgínia; (2) operação em escala experimental, pela firma "Union Carbide Nuclear Corp.", de centrífugas incorporando a tecnologia até então conhecida e (3) construção de modelos mais avançados de centrífugas em colaboração com a indústria. Convém acrescentar que a despesa prevista para a execução desse programa era de 2 a 3 milhões de dólares anuais, em comparação com 500.000 dólares gastos no mesmo setor em 1960 (29), e que atualmente empresas, como a "General Electric Co.", "W. R. Grace And Co." e "Electro-Nucleonics, Inc." estão participando ativamente desse programa (30).

A partir de 1960 o processo da centrifugação também começou a ser investigado no Japão. Neste país, os estudos teóricos e a pesquisa em escala experimental vêm sendo conduzidos por um grupo de pesquisadores do Instituto Tecnológico de Tóquio, sob a orientação de OYAMA (31, 32, 33, 34, 35, 36), enquanto que o desenvolvimento tecnológico do processo está a cargo do grupo industrial "Toshiba" (37). As investigações efetuadas até a presente data, que não se encontram sujeitas a restrições quanto à sua divulgação, têm fornecido resultados satisfatórios na separação dos isótopos de argônio.

Embora a grande maioria dos trabalhos citados se limite a descrever o desenvolvimento tecnológico e a separação de isótopos realizada com as centrífugas construídas, a teoria do processo de separação também mereceu a atenção dos investigadores. Neste sentido, as teorias básicas apresentadas por COHEN (6), para o caso geral de qualquer centrífuga, e por MARTIN e KUHN (10), para o caso particular da centrífuga com tracorrente, sofreram um posterior desenvolvimento nos trabalhos de KÄNAGAWA et al. (32, 33, 34), LOS e KISTEMAKER (38), GROTH e WELGE (39), PARKER (40, 41) e BERMAN (42, 43, 44). Finalmente, quanto aos

aspectos econômicos do processo, estes foram abordados, não somente nos trabalhos de KISTEMAKER e colaboradores (24) e de ZIPPE (28), como também nos trabalhos de HAMEL (45) e de BOTTGER (46).

O resumo histórico da separação de isótopos estáveis pelo processo da centrifugação em fase gasosa, que acabamos de apresentar, evidencia não somente a importância que, em diversos países, vem sendo dada a este processo de separação, como também a intensa atividade que está sendo desenvolvida neste setor por instituições de pesquisa e pela iniciativa privada. É fácil de compreender a razão deste acentuado interesse pela construção de centrífugas separadoras de isótopos, quando se têm em mente que estas máquinas constituem o meio mais promissor, especialmente em países destituídos de instalações de difusão gasosa, para a obtenção de combustível nuclear baseado em urânio levemente enriquecido de seu isótopo ^{235}U . Foi por este motivo que também a Comissão Nacional de Energia Nuclear decidiu considerar este processo de separação de isótopos mediante a aquisição de três centrífugas desenvolvidas, como modelo ZG3, por GROTH e colaboradores.

Em fins de 1958 estas centrífugas foram instaladas, com a nossa participação, no Instituto de Pesquisas Tecnológicas sob a orientação de GROTH e de seus colaboradores WELGE e NANN. A fim de realizar trabalhos de pesquisa no campo da separação de isótopos estáveis, com o auxílio desta instalação de centrifugação, descrita num trabalho de nossa autoria (15), foi então criada neste Instituto, a Secção de Separação de Isótopos. Dentro das finalidades desta Secção, subordinada à nossa chefia, estabelecemos em 1959 o seguinte programa de pesquisas, dividido em três partes, a saber: (1) estudo da separação dos isótopos de argônio; (2) estudos de espectrometria de massas e (3) estudo da separação dos isótopos de urânio. As duas primeiras partes deste programa foram concluídas em 1963 e os resultados obtidos, assim como o estudo teórico da centrífuga contracorrente, se encontram descritos nos trabalhos de JORDAN e colaboradores (47, 48, 49, 50, 51 e 52) e no trabalho de BULANG et al. (16). A terceira parte, iniciada ainda em 1961 com os trabalhos experimentais relativos ao hexafluoreto de urânio, constituiu o objeto da presente tese.

A separação dos isótopos de urânio, realizada na presente investigação, visa assim o estudo do enriquecimento de urânio natural de seu isótopo pouco abundante ^{235}U , na forma de hexafluoreto, por meio da centrífuga, modelo ZG3, na qual a contracorrente gasosa é estabelecida por convecção térmica. Esta investigação, que ainda não havia sido efetuada com a centrífuga em questão, de um lado, tem por finalidade verificar a possibilidade da aplicação prática da centrífuga à separação dos isótopos em questão e, de outro lado, tem por objeto complementar as teorias básicas da centrífuga contracorrente, pois estas, por si só, não são suficientes para permitir o cálculo das grandezas que caracterizam o processo de separação. Assim, a teoria desenvolvida por MARTIN e KUHN (10), embora forneça relações quantitativas, quando aplicada a gases pesados, como o hexafluoreto de urânio, vem afetada de grandes incertezas decorrentes das enormes simplificações feitas na sua elaboração. Por outro lado, a teoria estabelecida por COHEN (6), embora quantitativamente exata, é demasiadamente geral, de modo a impossibilitar o cômputo das grandezas necessárias à interpretação exata do processo de separação. No estudo da dependência entre o enriquecimento e a vazão do gás que atravessa a centrífuga, esta teoria, devido à sua grande generalidade, ainda falha no sentido de fornecer equações que não podem ser resolvidas sem o conhecimento do perfil de escoamento da contracorrente no interior da centrí-

fuga. Por este motivo e, ainda, em vista da possível aplicação prática da centrífuga, foi necessário investigar o processo da separação dos isótopos de urânio mediante a realização de experiências de separação nas quais o enriquecimento foi medido em função dos parâmetros operacionais da centrífuga.

Em vista destas considerações, a presente tese obedece ao esquema clássico da apresentação de um trabalho experimental. Assim, no Capítulo I é feito um resumo da teoria da centrífuga contracorrente dando-se ênfase especial ao estudo das características apresentadas pela centrífuga de contracorrente estabelecida térmicamente. No Capítulo II é descrito o material utilizado, a saber: o hexafluoreto de urânio, e os cuidados tomados no manuseio e na purificação deste material. No Capítulo III encontra-se a descrição da aparelhagem usada, composta da centrífuga, do sistema de introdução e retirada do gás da centrífuga e do espectrômetro de massas, assim como a descrição dos métodos de medida empregados. No Capítulo IV são apresentadas as experiências de separação realizadas e, finalmente, no Capítulo V é realizada a discussão dos resultados obtidos nestas experiências, a qual é completada com as conclusões às quais se chegou na separação de isótopos efetuada.

Durante a realização do presente trabalho recebemos a prestimosa colaboração das Secções de Aços Especiais, de Metrologia, de Materiais Primas Nucleares e de Transportes do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, da Cátedra nº 37 "Eletrotécnica Fundamental e Medidas Elétricas" da Escola Politécnica da Universidade de São Paulo e da Secção de Física do Estado Sólido da Faculdade de Filosofia, Ciências e Letras da Universidade de São Paulo. A estas entidades consignamos os nossos agradecimentos.

Desejamos também agradecer ao Prof. Dr. Francisco João Humberto Maffei, Superintendente do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, pelo interesse que demonstrou e pelo estímulo que nos deu durante a realização da presente investigação. Ao Prof. Maffei, como membro da Comissão Nacional de Energia Nuclear, se deve a instalação das centrífugas neste Instituto e, sem as facilidades que sempre nos proporcionou durante o desempenho de nossas atividades na Secção de Separação de Isótopos, certamente não teria sido possível separar os isótopos de urânio.

Outrossim, desejamos exprimir os nossos agradecimentos ao Assistente da Secção de Separação de Isótopos, Bacharel em Física Hélio Cardoso Chagas, pela dedicação e pelo esmôro com que realizou as medidas de espectrometria de massas. Ao Engenheiro Dalson Ravagnani, da Secção de Máquinas do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, pela ativa participação na realização das experiências de separação e pelas proveitosas discussões mantidas acerca do comportamento mecânico da centrífuga. Ao mecânico da Secção de Separação de Isótopos, Benedito F. Sampaio, pela perfeição e eficiência que demonstrou na construção do sistema de introdução e retirada de gás da centrífuga e pela colaboração que prestou durante a realização das experiências de separação. Ao funcionário da Secção de Separação de Isótopos, Izidoro Rubio, pelo auxílio prestado durante a operação das centrífugas e do espectrômetro de massas. Ao Bacharel em Física Ruy Borges da Silva, antigo colaborador da Secção de Separação de Isótopos, pela contribuição que, por diversas vezes, nos prestou na elucidação de defeitos eletrônicos do espectrômetro de massas. Ao Prof. Wilhelm Groth e ao Dr. Karl-Heinz Welge, do Instituto de Físico-Química da Universidade de Bonn, pela cordial hospitalidade com que nos acolheram durante a nossa estadia naquele Instituto em 1960 e pelas valiosas

discussões então mantidas sobre diversos aspectos da separação de isótopos de urânio.

Finalmente, somos gratos à Comissão Nacional de Energia Nuclear pelo estágio que nos proporcionou no Instituto de Físico-Química da Universidade de Bonn e pela assistência financeira prestada na realização do presente trabalho.

CAPÍTULO I

FUNDAMENTOS TEÓRICOS DA SEPARAÇÃO DE ISÓTOPOS POR CENTRIFUGAÇÃO

A teoria da separação de isótopos estáveis pelo processo da centrifugação em fase gasosa se encontra desenvolvida de um modo completamente geral na obra de COHEN (6). Em um trabalho de nossa autoria (47), apresentamos esta teoria para o caso especial da centrífuga contracorrente, completando a exposição com a discussão dos trabalhos de LOS e KISSEMAKER (38) e de GROTH e WELGE (39), os quais se referem à centrifugação de contracorrente gasosa estabelecida por convecção térmica.

Neste capítulo, temos em vista condensar esta teoria e a teoria geral da separação de isótopos estáveis, abordando apenas os tópicos necessários à interpretação teórica da presente investigação. A fim de evitar a necessidade de recorrer frequentemente à literatura original, a apresentação destas teorias será realizada de modo a encerrar a definição de todos os conceitos e a dedução de todas as equações que são indispensáveis à perfeita compreensão do assunto de que estamos tratando.

I: RESUMO DA TEORIA DA SEPARAÇÃO DE ISÓTOPOS ESTÁVEIS

A separação dos componentes de uma mistura de isótopos estáveis fundamentalmente não difere da separação dos componentes de uma mistura qualquer. Todavia, em virtude da grande semelhança existente entre as propriedades físicas e químicas das moléculas isotópicas, não se obtém uma separação suficientemente grande, quando esta é levada a efeito através de um único processo. Por este motivo, na realização prática da separação de isótopos, este processo é repetido inúmeras vezes em uma instalação formada de um conjunto de unidades idênticas, ligadas em série e em paralelo, que recebe o nome de cascata de separação de isótopos. As unidades da cascata, que efetuam apenas uma separação parcial da mistura isotópica, são denominadas elementos de separação. Um grupo de elementos ligados em paralelo na cascata e alimentados com material de mesma composição constitui um estágio. A cascata de separação se compõe, assim, de um conjunto de estágios ligados em série.

A separação de isótopos, que será considerada aqui, é a de uma mistura isotópica binária. Através da operação do elemento ou da cascata de separação desejamos, então, aumentar a concentração de um dos componentes desta mistura, ou seja, enriquecer a mistura deste componente. Chamaremos este componente, que apresenta maior valor do que o outro e, geralmente, é o menos abundante na mistura isotópica encontrada na natureza, de isótopo desejado.

As grandezas que nos interessam no estudo de um elemento ou de uma cascata de separação são a variação da mistura isotópica, expressa usualmente em mol/s, que designaremos por L, e a composição da mistura

ra, que será dada em termos da fração molar N do isótopo desejado ou em termos da relação de abundância R. Como a fração molar do outro isótopo da mistura em questão é $(1 - N)$, a relação de abundância é expressa por $R = N/(1 - N)$, de modo que $N = R/(1 + R)$.

Uma cascata de separação completa se compõe de duas partes, a saber, a secção de enriquecimento ("enriching section") e a secção de recuperacão ("stripping section"). A secção de enriquecimento se destina à produção de uma dada quantidade de material enriquecido do isótopo desejado com uma composição dada. A finalidade da secção de recuperacão é a de diminuir a quantidade da matéria prima que alimenta a cascata, graças à recuperacão do isótopo em questão na fração empobrecida proveniente da secção de enriquecimento. Nestas condições, enquanto a secção de enriquecimento é imprescindível para a obtenção do produto da separacão, a instalação da secção de recuperacão somente se justifica quando o valor da matéria prima é suficientemente elevado.

A função da cascata considerada é, então, a de separar a vazão de alimentacão F (mol/s) da mistura isotópica de composição natural, que apresenta a fração molar N_0 do isótopo desejado, em duas vazões, a saber, a vazão do produto P (mol/s), enriquecida do isótopo desejado, com a fração molar N_P , e a vazão do rejeito W (mol/s), empobrecida deste isótopo, com a fração molar N_W . O problema que surge agora na operacão da cascata com estas vazões é estabelecer o esquema de ligação e as condicões de operacão dos elementos de separacão que conduzem à cascata mais económica, isto é, aquela que opera com o menor gasto total possivel. A solucão deste problema constitui o principal objetivo da teoria da separacão de isotopos estáveis. Para atingir o objetivo visado, esta teoria trata os elementos e as cascatas de separacão sob dois pontos de vista inteiramente diferentes, que são apresentados em detalhe na obra de COMEN (6). O primeiro destes pontos de vista se baseia simplesmente no principio da conservacão da matéria, enquanto que o segundo torna por base o conceito das vazões de valor.

No resumo desta teoria, que temos em vista apresentar, pretendemos apenas lançar mão dos elementos que, provenientes da teoria em questão, apresentam interesse no tratamento teórico da separacão de isotopos por centrifugacão, a exposicão não sendo portanto orientada no sentido de fornecer a solucão do problema acima proposto.

1.1. Fatores de separacão

Consideremos o elemento de separacão mais simples, que é representado na Figura 1. Este elemento recebe uma vazão de alimentacão

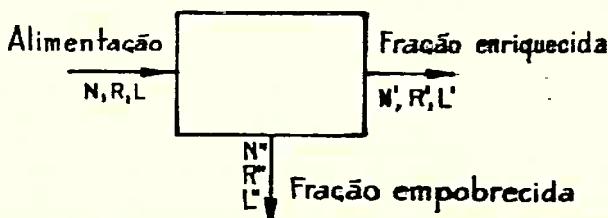


Figura 1 - Elemento de separacão simples

L da mistura isotópica binária com a fração molar N do isótopo desejado e fornece duas correntes, uma parcialmente enriquecida do isótopo desejado, o produto da separação, de vazão L' e fração molar N' e outra parcialmente empobrecida do mesmo isótopo, o rejeito da separação, de vazão L'' e fração molar N'' . As relações de abundância da alimentação, do produto e do rejeito são R , R' e R'' , respectivamente. Por definição, temos $N'' < N < N'$ e, portanto, $R'' < R < R'$. Designando por corte a relação $\theta = L'/L = L'/(L' + L'')$, vem $L = \theta L$ e $L'' = (1 - \theta)L$, sendo $0 < \theta < 1$.

Definimos por fator de separação da fração ou da corrente enriquecida ou, ainda, do produto a relação:

$$\alpha = \frac{R'}{R} = \frac{N'/(1 - N')}{N/(1 - N)} \quad (\alpha > 1) \quad (1)$$

Analogamente, o fator de separação da fração ou da corrente empobrecida ou, ainda, do rejeito é definido por:

$$\beta = \frac{R}{R''} = \frac{N/(1 - N)}{N''/(1 - N')} \quad (\beta > 1) \quad (2)$$

Podemos ainda definir o fator de separação total A por:

$$A = \frac{R'}{R''} = \frac{N'/(1 - N')}{N''/(1 - N')} = \alpha \cdot \beta \quad (3)$$

Qualquer uma das definições (1), (2) e (3) mede o grau de separação obtido na operação do elemento simples. Uma outra medida deste grau de separação é o fator de enriquecimento, definido por:

$$\epsilon = \alpha - 1 \quad (4)$$

Com auxílio da definição (4) e da definição de α , resulta que o aumento da fração molar do isótopo desejado no produto é dado por:

$$N' - N = \epsilon N(1 - N) \quad (5)$$

Para um pequeno enriquecimento, $\epsilon \ll 1$; neste caso, podemos admitir $(1 - N) = (1 - N')$ e a equação (5) pode ser escrita na forma:

$$N' - N = \epsilon N(1 - N) \quad (6)$$

Quando o isótopo desejado apresenta uma concentração muito pequena na vazão de alimentação, isto é, quando $N \ll 1$, segue da equação (6) que $\epsilon = (N' - N)/N$ e este fator pode, então, ser expresso em porcentagem.

O princípio da conservação da matéria aplicado ao isótopo desejado fornece:

$$NL = \theta LN' + (1 - \theta)LN''$$

de modo que:

$$N = \theta N' + (1 - \theta) N'' \quad (7)$$

Introduzindo-se a equação (7) no primeiro membro da equação (6), resulta que, no caso de pequeno enriquecimento, a diferença entre as frações molares das correntes enriquecida e empobrecida é dada por:

$$N' - N'' = \frac{\theta}{(1 - \theta)} N(1 - N) \quad (8)$$

Para o processo de separação simétrico em que $\theta = 1/2$, segue-se da equação (7) que o aumento da fração molar na corrente enriquecida ($N' - N$) é igual à diminuição da fração molar na corrente empobrecida ($N - N''$). A partir desta condição, pode-se mostrar facilmente que neste processo $\alpha = \beta$, de modo que então $R' = \alpha R$ e $R'' = R/\alpha$. Nestas condições, da definição de A vem para o processo de separação simétrico $A = \alpha^2$. Quando o processo de separação é assimétrico, o fator de separação α difere de β e depende do corte θ .

1.2. Equações fundamentais da separação de isotópos

Consideremos uma cascata construída com os elementos de separação simples da Figura 1, a qual apresenta estágios de tamanho diferente. Estes podem ser formados de um só elemento de tamanho variável ou de diversos elementos de mesmo tamanho e ligados em paralelo, cujo número é variável. Geralmente, a ligação entre os estágios é realizada de modo que as frações enriquecida e empobrecida provenientes de cada estágio alimentam, respectivamente, os estágios imediatos superior e inferior, como mostra o esquema da Figura 2, que representa uma parte da secção de enriquecimento da cascata.

Para o estágio de número s deste esquema, a vazão de alimentação com fração molar N_s é designada por L_s , enquanto que $\theta_s L_s$ é a vazão da corrente enriquecida de fração molar N'_s e $(1 - \theta_s) L_s$ é a vazão empobrecida de fração molar N''_s . Do estágio S no topo da cascata é retirada a vazão do produto P com fração molar N_P . Na secção da cascata compreendida entre o estágio genérico s e o estágio do produto S , isto é, na secção acima da linha imaginária \overline{w} traçada entre os estágios s e $s+1$ na Figura 2, o balanço do material, através do princípio da conservação da matéria, exige que se verifiquem as equações:

$$\theta_s L_s = (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} + P \quad (9)$$

para a mistura isotópica e

$$\theta_s L_s N_s = (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} N'_{s+1} + P N_S = (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} N'_{s+1} + P N_P \quad (10)$$

para o isótopo desejado.

A cascata que acabamos de considerar é uma cascata completa

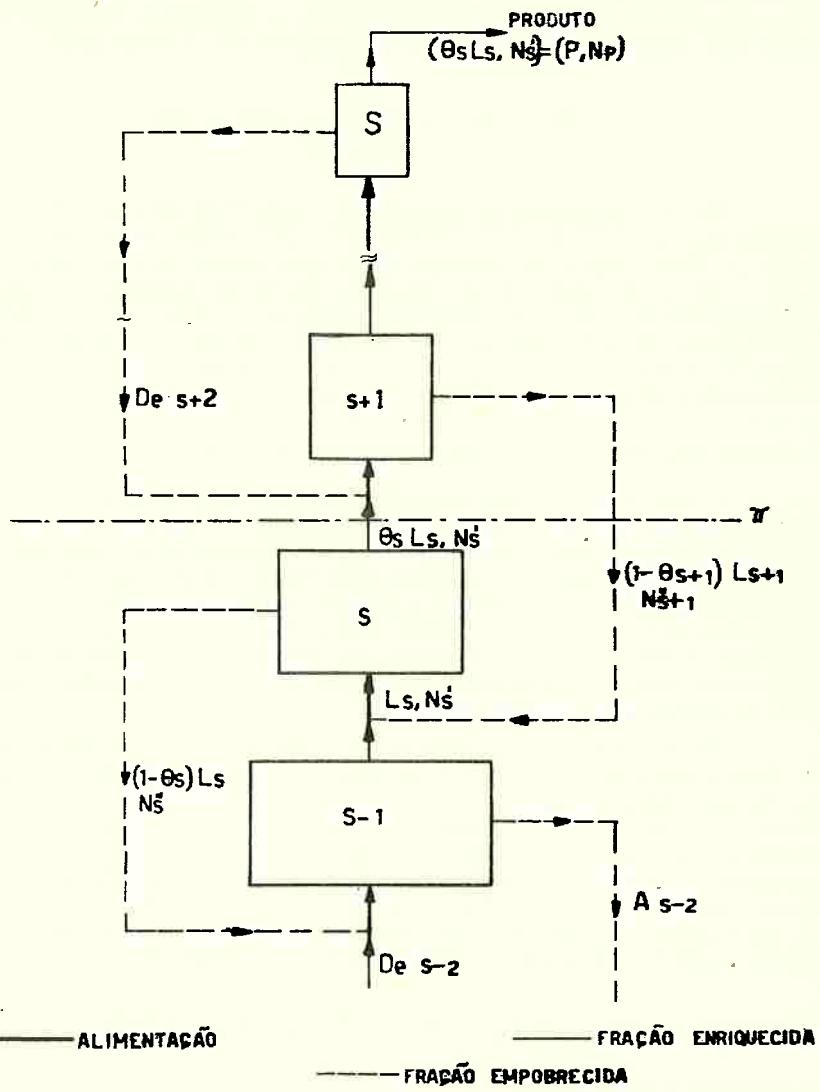


Figura 2 - Secção de uma cascata de separação

mente geral no sentido de que pode ser operada dentro de um grande intervalo de vazões L_s , arbitrariamente escolhidas, com as mesmas vazões de alimentação, produto e rejeito de frações molares conhecidas. Quando esta cascata é formada de elementos cujo fator de separação se encontra muito próximo da unidade, isto é, quando $\alpha - 1 = \epsilon \ll 1$, podemos tratar N e s como variáveis contínuas. Neste caso infinitesimal, os valores de L variam pouco de estágio para estágio, de modo que podemos fazer $L_s = L_{s+1}$. Da equação (9) resulta então $\theta_s - (1 - \theta_{s+1}) = P/L$. Como $P \ll L$, se considerarmos estágios afastados do topo S da cascata, podemos admitir que a expressão anterior se anula; então temos $\theta_s = (1 - \theta_{s+1})$. No caso infinitesimal, o corte θ_s é aproximadamente igual ao corte θ_{s+1} ; resulta, então, que neste caso todos os valores do corte θ são aproximadamente iguais a 1/2.

Quando a cascata considerada opera em condições não estacionárias, L_s , θ_s e N são funções que variam com o tempo. Neste caso, considerando ainda o esquema da Figura 2, a equação de conservação da matéria (9) adquire a forma geral:

$$\theta_s L_s - (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} = T_s(t) \quad (11)$$

onde $T_s(t)$ representa a quantidade da mistura isotópica que é transportada na cascata acima do estágio s . Quando não há perdas na cascata, esta quantidade é definida por:

$$T_s(t) = P + \sum_{j=s+1}^S \frac{\partial H_j}{\partial t} \quad (12)$$

Nesta definição, H_j é a retenção ("hold up") no estágio j da cascata, isto é, a quantidade de material que está sendo processada no estágio em questão. No caso não estacionário, H_j é também uma função do tempo.

Analogamente, para o isótopo desejado, a equação de conservação da matéria (10) apresenta a forma:

$$\theta_s L_s N'_s(t) - (1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} N'_{s+1}(t) = \tau_s(t) \quad (13)$$

onde $\tau_s(t)$ é a quantidade de isótopo desejado que está sendo transportada na cascata acima do estágio s e é dada por:

$$\tau_s(t) = P N'_S(t) + \sum_{j=s+1}^S \frac{\partial}{\partial t} H_j N'_j(t) \quad (14)$$

Combinando as equações (11) e (13) resulta:

$$(1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} [N'_s(t) - N'_{s+1}(t)] = \tau_s(t) - N'_s(t) T_s(t) \quad (15)$$

Considerando agora o caso infinitesimal, como então N_s não difere muito de N'_s , a equação (8) aplicada ao estágio s pode ser posta na forma:

$$N' - N''_s = \frac{\epsilon}{(1 - \theta_s)} N'_s (1 - N'_s) \quad (16)$$

Podemos ainda admitir que, no caso infinitesimal, o segundo membro da equação (16) se mantém inalterado, quando a equação é aplicada ao estágio s+1, pois neste caso $N'_s(t) - N''_s(t)$ não difere muito de $N'_{s+1}(t) - N''_{s+1}(t)$. Com esta aproximação estamos, na realidade, desprezando a retenção em um estágio; todavia, a aproximação é lícita, porque no caso infinitesimal temos $H_j \ll \sum_{j=1}^s H_j$. Introduzindo-se, então, na equação (15) o valor de N''_{s+1} proveniente da equação (16) aplicada ao estágio s+1 com a aproximação mencionada, resulta:

$$(1 - \theta_{s+1}) L_{s+1} \left[N'_s(t) - N'_{s+1}(t) + \frac{\epsilon}{(1 - \theta_s)} N'_s (1 - N'_s) \right] = \tau_s(t) - N'_s(t) T_s(t) \quad (17)$$

Passando ao limite de funções contínuas, $L_{s+1} \rightarrow L(s, t)$; $N'_s \rightarrow N(s, t)$; $\tau_s \rightarrow \tau(s, t)$; $T_s(t) \rightarrow T(s, t)$; $N'_s(t) - N'_{s+1}(t) \rightarrow -\partial N(s, t)/\partial s$ e lembrando que no caso infinitesimal $\theta_s \approx 1/2$, a equação (17) se transforma em:

$$\frac{L(s, t)}{2} \left\{ -\frac{\partial N(s, t)}{\partial s} + 2\epsilon N(s, t) [1 - N(s, t)] \right\} = \tau(s, t) - N(s, t) T(s, t) \quad (18)$$

Diferenciando, em relação a s , as equações (12) e (14) postas na forma de integrais para o caso infinitesimal, obtém-se:

$$\frac{\partial}{\partial s} T(s, t) = -\frac{\partial}{\partial t} H(s, t) \quad (19)$$

$$\frac{\partial}{\partial s} \tau(s, t) = -\frac{\partial}{\partial t} [H(s, t) N(s, t)]$$

As equações diferenciais parciais (18) e (19), que descrevem os efeitos dependentes do tempo em qualquer cascata do tipo infinitesimal, são conhecidas como as equações fundamentais da separação de isotopos.

No caso particular em que L não é uma função do tempo t e quando a retenção H é proporcional a L , isto é, $H = hL$, e portanto independente de t , da definição (12) vem $T(s, t) = P$ e nas equações (19) temos: $\partial T(s, t)/\partial s = 0$ e $\partial \tau(s, t)/\partial s = -h \partial N(s, t)/\partial t = -hL \partial N(s, t)/\partial t$. Introduzindo-se estas condições na equação (18) e diferenciando em relação a s , obtém-se:

$$hL \frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial s} \left[\frac{L}{2} \frac{\partial N}{\partial s} - \epsilon L N (1 - N) - P N \right] \quad (20)$$

Esta equação apresenta uma solução simples quando L é constante, como será visto mais tarde.

1.3. Potencial de separação

A análise até aqui apresentada, que se baseou simplesmente nas definições de α e de θ e no princípio da conservação da matéria, levou em conta apenas um tipo de elementos de separação, a saber, o elemento de separação simples representado na Figura 1. Esta análise pode ser estendida a cascatas compostas de qualquer tipo de elementos de separação, mediante a introdução do conceito das vazões de valor, considerando que, tanto o elemento de separação como a cascata, através de seu efeito separador, produzem uma variação no valor de uma quantidade de material separado. Entendemos, aqui, por vazão de valor, uma função U que representa o valor de uma dada quantidade de material separado. Nestas condições, a produção de valor resultante da separação de isotópos realizada por um elemento ou pela cascata é dada pela variação da função U .

A vazão de valor U é expressa pelo produto entre uma vazão de material e uma função de valor. Assim, para a cascata anteriormente considerada, as vazões de valor do produto, do rejeito e da alimentação são dadas por $U_P = PV(N_p)$, $U_W = WV(N_R)$ e $U_o = FV(N_o)$, respectivamente, onde $V(N_p)$, $V(N_R)$ e $V(N_o)$ são as funções de valor do produto, do rejeito e da alimentação. Durante a operação da cascata, variação total no valor é expressa por:

$$\Delta U = U_P + U_W - U_o = PV(N_p) + WV(N_R) - FV(N_o)$$

Para um elemento de separação, a variação da vazão de valor δU , isto é, o valor produzido pelo elemento quando está separando isotópos, recebe o nome de potencial de separação ("separative power").

Consideremos então o elemento de separação simples representado na Figura 1, que é alimentado pela vazão L da mistura de fração molar N . O potencial de separação deste elemento, por definição, é dado por:

$$\delta U = \theta L V(N') + (1 - \theta) L V(N'') - LV(N) \quad (21)$$

lembrando que $L' = \theta L$ é a vazão do produto de fração molar N' e $L'' = (1 - \theta)L$ é a vazão do rejeito de fração molar N'' .

No caso infinitesimal, em que $\alpha - 1 = \epsilon \ll 1$, expandindo $V(N')$ e $V(N'')$ em série de Taylor em relação a N e levando em conta a equação (6) e as equações de conservação para as vazões da mistura e do isótopo de sejado, resulta da equação (21):

$$\delta U = \frac{\theta}{1 - \theta} \frac{L \epsilon^2}{2} \frac{d^2 V(N)}{dN^2} [N(1 - N)]^2 \quad (22)$$

Considerando, agora, que a produção de valor de um elemento, ou seja, seu potencial de separação, não depende da concentração do isótopo que se deseja separar, devemos ter na equação (22):

$$[N(1 - N)]^2 \frac{d^2V(N)}{dN^2} = 1 \quad (23)$$

Nestas condições, o potencial de separação de um elemento simples no caso infinitesimal é dado por:

$$\delta U = \frac{\Theta}{1-\Theta} \frac{L \epsilon^2}{2} \quad (24)$$

A função de valor $V(N)$ é determinada a partir da resolução da equação diferencial (23), tendo em vista que $V(N)$ é mínimo e nulo, quando $N = N_0$, isto é, $V(N_0) = dV(N_0)/dN = 0$.

No caso de elementos de separação simples com valores grandes de α , a dedução do potencial de separação é feita de maneira análoga, exigindo porém a consideração do tipo do processo de separação. Então, para o processo de separação simétrico, o potencial de separação é:

$$\delta U = L \frac{(\alpha - 1) \ln \alpha}{\alpha + 1} \quad (25)$$

enquanto que para o processo de separação assimétrico, como mostram BULANG, GROTH et al. (16) se obtém:

$$\delta U = L \frac{\alpha (\beta - 1) \ln \alpha - (\alpha - 1) \ln \beta}{\alpha \beta - 1} \quad (26)$$

A capacidade de separação de um elemento é determinada pela vazão e pelo enriquecimento do isotopo desejado, de modo que sua medida quantitativa deve ser dada por uma função que dependa simultaneamente destas grandezas, isto é, de L e de α . As equações (24), (25) e (26) mostram então que o potencial de separação pode ser encarado como sendo uma medida da capacidade de separação de um elemento.

Na teoria da separação de isotópos por centrifugação é de fundamental importância o elemento de separação infinitesimal do tipo contracorrente. A expressão do potencial de separação deste elemento pode ser deduzida, imaginando o elemento situado entre dois reservatórios grandes, um inferior e outro superior, os quais contém, respectivamente, M mols da mistura isotópica, na qual a fração molar de isotopo desejado é N , e M' mols da mistura com uma fração molar N' ligeiramente maior que N . Durante sua operação, o elemento introduz P mols da mistura, contendo τ mols do isotopo desejado, no reservatório superior e retira a mesma quantidade do reservatório inferior. Em virtude deste transporte de material ocorre um aumento na fração molar do isotopo desejado no reservatório superior, que é dado pela expressão $\Delta N' = (N'M' + \tau)/(M' + P) - N' = (\tau - N'P)/(M' + P)$, e uma diminuição na fração molar deste isotopo no reservatório inferior, expressa análogamente por $\Delta N = (\tau - NP)/(M - P)$.

O potencial de separação deste elemento é então dado pela soma das variações no valor da quantidade de material separado, que se verifica nos dois reservatórios; assim:

$$\begin{aligned} \delta U = \delta[M'V(N')] + \delta[MV(N)] &= (M' + P)V(N' + \Delta N') - M'V(N') + \\ &+ (M - P)V(N - \Delta N) - MV(N) \end{aligned} \quad (27)$$

Expandindo as funções de valor em série, substituindo $\Delta N'$ e ΔN pelas

expressões dadas acima e lembrando que no caso infinitesimal $N' \approx N$, de modo que a diferença $V(N') - V(N)$ pode ser considerada nula, resulta da equação (27) uma expressão contendo $dV(N')/dN'$ e $dV(N)/dN$. O desenvolvimento em série de $dV(N')/dN'$ permite obter para o caso infinitesimal ($N' \approx N$):

$$\delta U = (\tau - NP) (N' - N) \frac{d^2 V(N)}{dN^2} \quad (28)$$

Utilizando, agora, a função de valor determinada pela equação (23), segue-se da equação (28) que o potencial de separação de um elemento infinitesimal contracorrente é expresso por:

$$\delta U = \frac{(\tau - NP) (N' - N)}{[N(1 - N)]^2} \quad (29)$$

A quantidade τ , isto é, a quantidade do isótopo desejado que é transportada de um reservatório a outro, é chamada transporte de material desejado. O fator $\tau - NP$ da equação (29) é o transporte resultante no funcionamento do elemento contracorrente e determina o enriquecimento do material presente no reservatório superior.

A importância do potencial de separação reside no fato de que o número total de elementos de separação para produzir uma variação ΔU na vazão de valor da cascata é dado por $n = \Delta U / \delta U$. Então, para um dado valor de ΔU , determinado pela vazão do produto P, para vazões de alimentação F e de rejeito W dadas, e pelas frações molares N_P , N_R e N_O , a cascata de separação poderá ser instalada com o menor número possível de elementos, quando estes são projetados e construídos de modo a fornecerem o maior valor possível do potencial de separação. Pelo mesmo motivo, existindo a possibilidade de construir cascatas com elementos baseados em processos de separação diferentes, a comparação econômica destas cascatas deve ser realizada através dos valores máximos dos potenciais de separação dos diferentes elementos em questão. Finalmente, a eficiência de um dado processo de separação pode ser avaliado por meio da comparação entre o potencial de separação do elemento que realiza o processo de separação e o potencial de separação máximo que teoricamente o elemento pode apresentar.

1.4. Estudo da cascata quadrada

A cascata formada de estágios de mesma vazão e, portanto, do mesmo tamanho, que se encontram ligados em série, recebe o nome de cascata quadrada. Como nesta cascata, a vazão L é constante, a equação (20) pode ser posta sob a forma:

$$c_6 \frac{\partial N}{\partial t} = c_5 \frac{\partial^2 N}{\partial s^2} - \frac{\partial}{\partial s} [PN + c_1 N(1 - N)] \quad (30)$$

onde além de P, são constantes c_1 , c_5 e c_6 , dadas por $c_6 = hL = \text{retenção por estágio}$, $c_5 = L/2$ e $c_1 = \epsilon L$. Pode-se demonstrar que exatamente a mesma forma da equação (30) se aplica a qualquer tipo de unidade de separação contracorrente, desde que as constantes c_1 e c_5 sejam identificadas

com as quantidades características destas unidades e s seja substituída pela cordenada z ao longo do comprimento da coluna contracorrente. Neste sentido, uma unidade contracorrente é equivalente a uma cascata quadrada formada dos elementos de separação simples da Figura 1. Como no presente capítulo temos em vista apresentar o estudo teórico da centrífuga contracorrente, é pois de toda a conveniência, a discussão das propriedades desta cascata.

Consideremos, então, a operação da cascata quadrada em regime estacionário, no qual $\partial N / \partial t = 0$. Neste caso, a primeira integração da equação (30) fornece o gradiente de concentração:

$$c_5 \frac{dN}{ds} = c_1 N(1 - N) - P(N_p - N) \quad (31)$$

Separando as variáveis, a segunda integração, realizada entre a base ($s=0, N_s = N_o$) e o topo ($s=S, N_s = N_p$) da cascata permite obter a expressão:

$$S = \frac{1}{\epsilon \Delta(\psi)} \tanh^{-1} \left[\frac{(N_p - N_o) \Delta(\psi)}{(N_p - 2N_p N_o + N_o) - (N_p - N_o) \psi} \right] \quad (32)$$

onde $\psi = P/c_1$, $\Delta(\psi) = [1 + 2(1 - 2N_p) + \psi^2]^{1/2}$ e $\epsilon = c_1/2c_5$. Quando N_p e ψ são conhecidos, a equação (32) fornece explicitamente o número total de estágios S da cascata quadrada (ou o comprimento Z da coluna contracorrente). Se S é dado, a equação (32) é uma relação implícita entre N_p e ψ .

No caso especial em que $N \ll 1$ e $N_p \ll 1$, a expressão de $\Delta(\psi)$ se torna igual a $(1 + \psi)$ e $\tanh^{-1} \{ (N_p - N_o) \Delta(\psi) / [(N_p - 2N_p N_o + N_o) - (N_p - N_o) \psi] \}$ será dado por $(1/2) \ln \{ N_p / [N_o - (N_p - N_o) \psi] \}$. Nestas condições a equação (32) apresenta a forma mais simples:

$$S = \frac{1}{2\epsilon(1+\psi)} \ln \frac{N_p}{N_o - \psi(N_p - N_o)} \quad (33)$$

Da equação (33) resulta:

$$\frac{N_p}{N_o} = \frac{(1 + \psi) \exp 2\epsilon S(1 + \psi)}{1 + \psi \exp 2\epsilon S(1 + \psi)} \quad (34)$$

A equação (34) exprime então o enriquecimento do isótopo desejado, que é obtido entre a base e o topo da cascata quadrada, em função da produção normalizada $\psi = P/c_1$, para um dado valor de $2\epsilon S$.

A dedução da expressão do potencial de separação por estágio da cascata quadrada (ou por unidade de comprimento da unidade contracorrente) pode ser feita mediante a consideração de uma cascata formada de cascatas quadradas (ou colunas contracorrentes) e o uso da função de valor determinada pela equação (23). Um procedimento mais simples para obter-se esta expressão consiste em comparar as propriedades do elemento de separação simples com as propriedades de um estágio da cascata

quadrada. Assim, da equação (24) resulta que o potencial de separação de um elemento simples numa cascata infinitesimal é dado por:

$$\delta U = \frac{L \epsilon^2}{2} \quad (35)$$

lembmando que neste caso podemos tomar $\Theta = 1/2$. Para um estágio de uma cascata quadrada composta de elementos de separação simples, mostramos que podemos identificar $\epsilon = c_1/L$ e $L = 2c_5$, de modo que $\delta = c_1/2c_5$. Então, da equação (35) resulta:

$$\delta U = \frac{c_1^2}{4c_5} \quad (36)$$

que é a expressão do potencial de separação por estágio da cascata quadrada (ou por unidade de comprimento da coluna contracorrente).

2. TEORIA GERAL DA SEPARAÇÃO DE ISÓTOPOS POR CENTRIFUGAÇÃO

Uma centrifuga a gás consiste essencialmente de um cilindro ôco ou rotor, que gira uniformemente com elevada velocidade angular em torno de seu eixo de rotação vertical e contém um gás puro ou uma mistura gasosa. Na teoria que apresentaremos a seguir, designarmos por r_2 o raio interno do rotor e por ω (rad/s), a velocidade angular do rotor. Admitiremos, ainda, que em relação à fase gasosa se encontram sempre satisfeitas as seguintes hipóteses: (1) o gás gira com o cilindro e, portanto, apresenta a mesma velocidade angular ω ; (2) o gás segue a lei do gás ideal nas condições de pressão e temperatura que prevalecem no interior do rotor e (3) a temperatura do gás é mantida constante.

2.1. Fator de separação de equilíbrio de uma centrifuga

Suponhamos, inicialmente, que no interior da centrifuga se encontra um gás puro de massa molecular M , o qual com exceção do movimento circular não apresenta nenhum outro movimento. Por conveniência, vamos escolher um sistema de coordenadas cilíndricas (r, θ, z) girando com o gás e com origem no eixo de rotação. Em virtude do movimento de rotação, atua então sobre a unidade de massa do gás, situada no raio r , a força centrífuga $\omega^2 r$, a qual estabelece na direção radial o gradiente de pressão $\partial p / \partial r$. Denotando por ρ a densidade do gás (g/cm^3), da hidrodinâmica vem:

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \rho \omega^2 r \quad (37)$$

Combinando esta equação com a equação do gás ideal, $p = \rho RT/M$, resulta que o gradiente de densidade ao longo do raio é dado por:

$$\frac{\partial \rho}{\partial r} = \frac{\rho M}{RT} \omega^2 r \quad (38)$$

onde T é a temperatura absoluta do gás e R é a constante dos gases igual a $8,314 \times 10^7$ erg/ $^{\circ}$ K/mol. A integração da equação (38) fornece a distribuição das densidades do gás no campo centrífugo:

$$\rho(r) = \rho(0) \exp \frac{M(\omega r)^2}{2RT} \quad (39)$$

na qual $\rho(r)$ e $\rho(0)$ são as densidades do gás no raio r e no eixo do rotor ($r = 0$), respectivamente.

Do ponto de vista molecular, a distribuição de densidades, dada pela equação (39), provem de um equilíbrio dinâmico entre o efeito da difusão causado pelo movimento ao acaso das moléculas, que tende a eliminar o gradiente de densidade, e o efeito do campo centrífugo, que tende a deslocar as moléculas para a periferia e estabelecer, assim, o gradiente de densidade. A difusão das moléculas na direção radial fornece a densidade de corrente ou fluxo J_d (g/s.cm²), que através da primeira lei de Fick e da equação (38) é:

$$J_d = -D \frac{\partial \rho}{\partial r} = -D\rho \frac{M \omega^2 r}{RT} \quad (40)$$

onde D é o coeficiente de difusão mútua. No equilíbrio considerado, a densidade de corrente de difusão é exatamente contrabalançada pela densidade de corrente ou fluxo J_c determinada pelo campo centrífugo. Esta densidade de corrente, dirigida para a periferia, é dada através da definição do fluxo por $J_c = \rho u_c$, onde u_c é a velocidade das moléculas na direção radial e no sentido do campo centrífugo. Portanto, no equilíbrio em questão:

$$J_c = \rho u_c = D\rho \frac{M \omega^2 r}{RT} \quad (41)$$

que é a equação do fluxo de moléculas gasosas num campo centrífugo.

Numa mistura de gases ideais presentes num campo centrífugo, cada componente apresenta seu próprio gradiente de densidade, de modo que a equação (41) vale para cada componente separadamente. Assim:

$$\rho_i u_{c,i} = D_i \rho_i \frac{M_i \omega^2 r}{RT} \quad (42)$$

sendo agora D_i o coeficiente de difusão das moléculas do componente i a través de toda a mistura. Como para misturas isotópicas coeficiente de difusão não possui um significado exato, não utilizaremos neste caso o índice i .

Da equação do gás ideal e da equação (39), segue-se que a pressão do gás no raio r da centrífuga é dada por:

$$p(r) = p(0) \exp \frac{M(\omega r)^2}{2RT} \quad (43)$$

onde $p(0)$ é a pressão no eixo da centrífuga ($r = 0$). A equação (43) exprime simplesmente a distribuição de Boltzmann para as pressões de um gás presente em um campo centrífugo.

Suponhamos, agora, que no interior da centrífuga se encontra uma mistura binária de isótopos gasosos. Seja N a fração molar do isótopo leve e pouco abundante, isto é, do isótopo desejado, de massa molecular M_1 . Como a fração molar do outro isótopo de massa molecular $M_2 > M_1$ é $(1 - N)$, as pressões parciais dos dois componentes isotópicos são iguais a $p_1 = Np$ e $p_2 = (1 - N)p$, respectivamente, quando a pressão total da mistura é $p = p_1 + p_2$. Aplicando-se a equação (43) aos dois componentes da mistura e substituindo-se as pressões parciais pelos seus respectivos valores, resulta que a relação das frações molares no eixo da centrífuga ($r = 0$) é dada por:

$$\left(\frac{N}{1-N}\right)_0 = \left(\frac{N}{1-N}\right)_{r_2} \exp \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \quad (44)$$

onde $[N/(1-N)]_0$ e ωr_2 são respectivamente, a relação das frações molares dos dois isótopos e a velocidade tangencial do gás na periferia ou parede interna do rotor ($r = r_2$).

Como admitimos $M_2 > M_1$, a equação (44) mostra que $[N/(1-N)]_0 > [N/(1-N)]_{r_2}$, de modo que durante a operação da centrífuga ocorre um aumento da concentração do isótopo leve na região axial. Nestas condições, a centrífuga constitui um elemento que realiza uma separação parcial de isótopos em fase gasosa.

Definimos então por fator de separação do processo simples no equilíbrio α_0 a relação:

$$\alpha_0 = \frac{[N/(1-N)]_0}{[N/(1-N)]_{r_2}} = \frac{R(0)}{R(r_2)} \quad (45)$$

de modo que da equação (44) resulta:

$$\alpha_0 = \exp \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \quad (46)$$

Convém notar que o fator de separação dado pela equação (46) se refere ao estado de equilíbrio já considerado, o qual ocorre no interior da centrífuga quando não há retirada de gás do rotor, isto é, quando a centrífuga não está operando em condições de produção dos isótopos parcialmente separados.

A equação (46) revela que o fator de separação de equilíbrio α_0 depende da diferença de massas moleculares $M_2 - M_1$ e não de sua relação, como é o caso do processo da difusão gasosa, no qual o fator de separação de equilíbrio é dado por $\alpha_0 = \sqrt{M_2/M_1}$. Nestas condições, o pro-

cesso da centrifugação apresenta a vantagem de ser igualmente apropriado para a separação de isotópos de elementos leves e pesados. Assim, na separação dos isotópos de urânio ^{235}U e ^{238}U na forma de hexafluoreto de urânio UF_6 , onde $M_2 - M_1 = 3$, para velocidades periféricas de 300 m/s e 400 m/s, o processo da centrifugação fornece, a 300°K, fatores de separação de equilíbrio iguais a 1,056 e 1,101, respectivamente, isto é, enriquecimentos de 5,6% e 10,1%, enquanto que no processo da difusão gasosa, obtém-se um fator de separação de equilíbrio de apenas $\alpha_0 = \sqrt{352/349} = 1,0043$, ao qual corresponde, portanto, um enriquecimento de 0,43%.

2.2. Tipos de centrífugas a gás

A fim de utilizar a centrífuga a gás como um elemento de separação com produção de material enriquecido, torna-se necessário extrair do rotor a fração enriquecida do isótopo desejado ou produto da separação. Neste sentido, foram desenvolvidos três tipos de centrífugas, a saber: (1) a centrífuga concorrente, (2) a centrífuga com evaporação e (3) a centrífuga contracorrente.

Na centrífuga concorrente, a mistura isotópica de alimentação é introduzida numa das extremidades do rotor através de um eixotubular, enquanto que na outra extremidade as frações enriquecidas de isótopo leve (produto) e de isótopo pesado (rejeito) são retiradas, respectivamente, do eixo e da periferia do rotor. O processo de separação que ocorre nessa centrífuga é o processo de separação simples determinado apenas pela ação do campo centrífugo, obtendo-se, pois, no equilíbrio o fator de separação dado pela equação (46).

Na centrífuga com evaporação, a mistura isotópica a ser separada se encontra na parede interna do rotor em estado líquido. O vapor desta mistura se apresenta enriquecido de isótopo leve, dada a maior facilidade de vaporização deste componente, e é retirado do eixo da centrífuga, enquanto que no líquido aderente à parede do rotor ocorre um enriquecimento do isótopo pesado. Resulta do efeito combinado da vaporização e do campo centrífugo, que a centrífuga com evaporação fornece um enriquecimento maior do que o obtido no processo de separação simples. Todavia esta centrífuga sofre da desvantagem de não permitir a realização de um processo de produção contínuo, razão pela qual não apresenta interesse do ponto de vista de sua utilização prática.

Na centrífuga contracorrente, a introdução da mistura de alimentação é realizada através de um eixo tubular e no interior de seu rotor é estabelecida uma contracorrente gasosa na direção axial. A fração enriquecida de isótopo leve é então retirada do eixo da centrífuga numa das extremidades do rotor e a fração enriquecida de isótopo pesado é retirada da periferia na outra extremidade. Como em todos os aparelhos de separação em contracorrente, nesta centrífuga ocorre um processo de separação múltiplo numa só unidade, o qual conduz a um enriquecimento isotópico muito maior do que proveniente do processo de separação simples. Em vista desta multiplicação do efeito primário de separação determinado pelo campo centrífugo e da possibilidade de operação contínua, praticamente todo o desenvolvimento tecnológico de centrífugas a gás vem sendo orientado no sentido da construção de centrífugas contracorrentes.

2.3. Equação diferencial fundamental da centrífuga

A equação diferencial fundamental da centrífuga é uma equação

diferencial parcial, que fornece a distribuição da concentração do isótopo de sejado em relação ao espaço e ao tempo no interior do rotor, quando a centrífuga está operando em condições de produção de material parcialmente separado.

Consideremos então uma centrífuga que, contendo a mistura isotópica binária, está produzindo material parcialmente separado. No estudo dos diversos tipos de centrífugas vimos que esta condição é satisfeita quando o gás circula através do rotor em direção axial ou radial. Para que a equação fundamental possa ser aplicada a qualquer tipo de centrífugas admitiremos que o escoamento do gás através do rotor seja simultaneamente axial e radial. No sistema de coordenadas anteriormente escolhido, o movimento do gás como um todo será dado então através da componente de velocidade radial $u = u(r, z)$, da componente de velocidade azimutal $v = 0$ e da componente de velocidade axial $w = w(r, z)$. Este movimento do gás determina uma perturbação contínua na distribuição das concentrações de equilíbrio, graças à qual o sistema desloca material no sentido de restaurar o equilíbrio e fornece, assim, o transporte do material desejado.

A fim de estabelecer a equação diferencial fundamental, imaginemos uma pequena região anelar do rotor limitada por duas superfícies cilíndricas concêntricas, distantes entre si de δr , e por dois planos horizontais paralelos, distantes entre si de δz . Em virtude do movimento do gás, da ação do campo centrífugo e da difusão, este elemento de volume é atravessado na direção radial pelas seguintes densidades de corrente do isótopo desejado (de massa molecular M_1): (1) $J_u = \rho_1 u$, correspondente à componente de velocidade u ; (2) $J_c = \rho_1 u_{c,1}$, determinada pelo campo centrífugo e (3) $J_{d,r} = -D \partial \rho_1 / \partial r$ proveniente da difusão em sentido contrário ao gradiente de densidade. O fluxo radial total é dado portanto por: $J(r) = J_u + J_c + J_{d,r}$. Na direção axial devemos considerar no elemento de volume em questão as seguintes densidades de corrente do isótopo de sejado: (1) $J_w = \rho_1 w$, determinada pela componente de velocidade w e (2) $J_{d,z} = -D \partial \rho_1 / \partial z$, causada pela difusão de retorno ("back diffusion") em sentido contrário ao da componente de velocidade w , de modo que o fluxo axial total é dado por $J(z) = J_w + J_{d,z}$. A aplicação da equação da continuidade no intervalo de tempo dt , fornece então a equação:

$$\frac{\partial \rho_1}{\partial t} = -\frac{\partial J(r)}{\partial r} - \frac{\partial J(z)}{\partial z} = -\frac{\partial}{\partial r} \left[\rho_1 u + \rho_1 u_{c,1} - D \frac{\partial \rho_1}{\partial r} \right] - \frac{\partial}{\partial z} \left[\rho_1 w - D \frac{\partial \rho_1}{\partial z} \right] \quad (47)$$

Substituindo-se nesta equação a expressão do fluxo devido ao campo centrífugo, dado pela equação (42), obtém-se:

$$\frac{\partial \rho_1}{\partial t} = -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \left(\rho_1 u + D \rho_1 \frac{M_1 \omega^2 r}{RT} - D \frac{\partial \rho_1}{\partial r} \right) - \frac{\partial}{\partial z} (\rho_1 w) + D \frac{\partial^2 \rho_1}{\partial z^2} \quad (48)$$

A equação (48) pode ser expressa agora em termos da pressão total da mistura e das frações molares dos dois isótopos N e $(1 - N)$, lembrando que

$$\rho_1 = \frac{M_1}{RT} p_1 = \frac{M_1}{RT} N p \quad (49)$$

e que, da equação (37) vem:

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial P_1}{\partial r} + \frac{\partial P_2}{\partial r} = w^2 r (\rho_1 + \rho_2) = \frac{w^2 r}{RT} p [M_1 N + M_2 (1 - N)] \quad (50)$$

Com estas substituições e considerando que D_p é constante, resulta:

$$p \frac{\partial N}{\partial t} = \frac{D_p}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial N}{\partial r} + \frac{(M_2 - M_1) w^2 r^2}{RT} N(1 - N) \right] - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (N_{pru}) - \frac{\partial}{\partial z} (N_{pw}) + D \frac{\partial^2}{\partial z^2} (N_p) \quad (51)$$

que é a equação diferencial parcial desejada, válida para qualquer centrífuga.

Dependendo da natureza da circulação do gás no interior do rotor, dada pelas velocidades u e w , a equação (51) apresenta formas particulares correspondentes aos diversos tipos de centrífuga anteriormente descritos. Assim, na centrífuga com evaporação, $w = 0$ e $ru = \text{constante}$, enquanto que nas centrífugas concorrente e contracorrente $u = 0$ e w descreve a natureza do escoamento gasoso no interior do rotor.

2.4. Potencial de separação da centrífuga

A expressão do potencial de separação de uma centrífuga a gás qualquer é deduzida mediante a consideração do transporte de material desejado, o qual ocorre no interior da centrífuga em virtude da perturbação na distribuição de equilíbrio, como já foi visto. Quando não existe este equilíbrio, no elemento de volume anteriormente mencionado o fluxo de moléculas gasosas J_c , proveniente da ação do campo centrífugo, não é igual ao fluxo $J_{d,r}$, provocado pela difusão em sentido oposto. Neste caso, ocorre, portanto, um transporte resultante de material desejado através da superfície cilíndrica de área $d\sigma$ do elemento de volume considerado, que é dado por $J_d\sigma = (J_c - J_{d,r})d\sigma$. Nestas condições, este elemento de volume se comporta como um elemento de separação infinitesimal do tipo contracorrente. O transporte resultante de material, que no elemento contracorrente é dado por $\tau - NP$, corresponde, no caso da centrífuga, ao transporte de material $J_d\sigma$. Por conseguinte, conhecido $J_d\sigma$ podemos lançar mão da equação (29) para estabelecer a expressão ao potencial de separação para o elemento da centrífuga que acabamos de considerar.

A expressão de $J_d\sigma$ é obtida a partir dos valores de J_c e $J_{d,r}$ apresentados anteriormente. Então resulta que o transporte resultante de material através da superfície $d\sigma$, expresso em mol/s, é dado para o topo desejado (massa molecular M_1) por:

$$\frac{J_d\sigma}{M_1} = (J_c - J_{d,r}) \frac{d\sigma}{M_1} = (P_1 u_{c,1} - D \frac{\partial \rho_1}{\partial r}) \frac{d\sigma}{M_1} \quad (52)$$

Derivando-se a equação (49) em relação a r , com auxílio das equações (42) e (50) obtem-se:

$$(\rho_1 u_{c,1} - D \frac{\partial \rho_1}{\partial r}) \frac{d\sigma}{M_1} = \frac{Dp}{RT} \left[(M_1 - M_2) \frac{\omega^2 r}{RT} N(1 - N) - \frac{\partial N}{\partial r} \right] d\sigma \quad (53)$$

Introduzindo esta expressão do transporte do isótopo desejado na equação (29) e tendo em vista que no presente caso $N' - N = (\partial N / \partial r) dr$ a expressão do potencial de separação dU do elemento de separação considerado na centrífuga é:

$$dU = \frac{\frac{Dp}{RT} \left[(M_1 - M_2) \frac{\omega^2 r}{RT} N(1 - N) - \frac{\partial N}{\partial r} \right] \frac{\partial N}{\partial r}}{N^2(1 - N)^2} d\sigma dr \quad (54)$$

Tomando $\partial N / \partial r$ como a única variável independente, verifica-se, ao derivar dU em relação a $\partial N / \partial r$, que o potencial de separação dU é máximo quando:

$$\frac{\partial N}{\partial r} = \frac{1}{2} (M_1 - M_2) \frac{\omega^2 r}{RT} N(1 - N) \quad (55)$$

Isto é, quando o gradiente de concentração ao longo do campo centrífugo apresenta a metade de seu valor de equilíbrio, pois no equilíbrio temos $\rho_1 u_{c,1} = D(\partial \rho_1 / \partial r)$ e então da equação (53) vem:

$$\frac{\partial N}{\partial r} = (M_1 - M_2) \frac{\omega^2 r}{RT} N(1 - N) \quad (56)$$

O valor de dU_{max} , obtido por meio da substituição de $\partial N / \partial r$ dado pela equação (55) em (54), é:

$$(dU)_{max} = \frac{Dp}{RT} \left[\frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r}{2RT} \right]^2 d\sigma dr \quad (57)$$

Integrando a equação (57) para toda a centrífuga de comprimento Z e raio interno r_2 e lembrando que a área da superfície cilíndrica do elemento de separação é $d\sigma = 2\pi r Z$, resulta de

$$(\delta U)_{max} = \int (dU)_{max} = \frac{Dp}{RT} \left[\frac{(M_2 - M_1) \omega^2}{2RT} \right]^2 \int_0^{r_2} r^2 2\pi r Z dr$$

a expressão do potencial de separação máximo de qualquer centrífuga a gás:

$$\begin{aligned}
 (\delta U)_{\max} &= \frac{D_p}{RT} \left[\frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \right]^2 \frac{\pi Z}{2} \text{ (mol/s)} \\
 &= \rho D \left[\frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \right]^2 \frac{\pi Z}{2} \text{ (g/s)}
 \end{aligned} \tag{58}$$

A equação (58) mostra que o potencial de separação máximo depende da quarta potência de velocidade periférica ωr_2 da centrífuga e é proporcional ao comprimento Z do rotor. Esta consequência é de importância fundamental para a aplicação prática do processo de centrifugação. Além disto, o potencial de separação máximo é usado como padrão para avaliar a eficiência dos diversos tipos de centrífugas.

3. TEORIA DA CENTRÍFUGA CONTRACORRENTE

A centrífuga contracorrente é uma centrífuga a gás, no interior da qual são estabelecidas duas correntes gasosas que escoam na direção axial e em sentidos opostos, uma ao longo do eixo e outra ao longo da parede interna do rotor, como mostra esquematicamente a Figura 3.

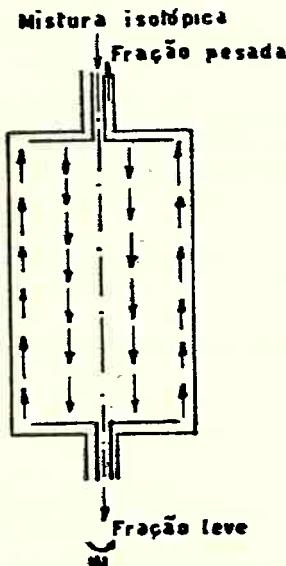


Figura 3 - Esquema da centrífuga contracorrente

Sob a ação do campo centrífugo, a mistura isotópica binária considerada no rotor sofre uma separação radial, de modo a ocorrer um aumento de concentração do isótopo leve nas proximidades do eixo do rotor e um aumento de concentração do isótopo pesado nas proximidades da parede do rotor. Devido ao escoamento em contracorrente, resulta que a corrente gasosa axial é progressivamente enriquecida do componente leve durante seu percurso através do rotor, enquanto que a corrente gasosa periférica se enriquece, do mesmo modo, do componente pesado. Numa das extremidades do rotor, a corrente axial é separada em duas frações: a fração leve é removida da parte inferior e a fração pesada é removida da parte superior.

dades do rotor, a mistura isotópica apresenta, assim, um enriquecimento crescente do isótopo pesado e na outra extremidade a mistura se enriquece cada vez mais do isótopo leve até atingir-se um estado de equilíbrio controlado pela difusão de retorno, isto é, pela difusão das moléculas em sentido contrário ao das correntes axiais.

A contracorrente no interior do rotor determina, portanto, o estabelecimento de um gradiente de concentração em direção axial, cuja grandeza é limitada apenas pela difusão de retorno. Em vista disto obtém-se na centrífuga contracorrente um efeito de separação que é muito maior do que o efeito de separação primária produzido na direção radial pelo campo centrífugo.

3.1. Equação diferencial parcial da centrífuga contracorrente

Considerando que na centrífuga contracorrente o movimento do gás no interior do rotor ocorre apenas na direção axial, as componentes de velocidade são $u(r, z) = 0$ e $w(r, z) = w(r)$, tendo-se ainda $p(r, z) = p(r)$. Nestas condições, a equação diferencial parcial (51) se torna:

$$p \frac{\partial N}{\partial t} = \frac{D_p}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial N}{\partial r} + \frac{(M_2 - M_1)(w^2 r)}{RT} N(1 - N) \right] - pw(r) \frac{\partial N}{\partial z} + D_p \cdot \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} \quad (59)$$

Convém notar que no segundo membro desta equação de continuidade, a primeira derivada é a derivada, em relação a r , do fluxo resultante do isótopo leve na direção radial, $J(r) = J_c + J_d$, produzido pelo campo centrífugo e pela difusão; o segundo termo representa a derivada, em relação a z , do fluxo do isótopo leve na direção axial, J_w , causado pela corrente axial estabelecida no interior do rotor e o terceiro termo é a derivada, em relação a z , do fluxo de difusão axial (difusão de retorno) do isótopo leve, $J_{d,z}$.

Para o estado estacionário, em que $(\partial N / \partial t) = 0$, considerando $(\partial^2 N / \partial z^2)$ um infinitésimo de segunda ordem, a primeira integração da equação (59), realizada para pequenas variações de N em relação a z , fornece o gradiente de concentração radial da centrífuga contracorrente:

$$\frac{\partial N}{\partial r} = - \frac{(M_2 - M_1) w^2 r}{RT} N(1 - N) + \frac{1}{D_p r} \frac{\partial N}{\partial z} \int_0^r p w r dr \quad (60)$$

Ao invés de realizar a segunda integração em relação a r , convém considerar as condições de contorno, as quais permitem com auxílio da equação (60) obter a equação diferencial parcial, que nos interessa no estudo do comportamento da centrífuga contracorrente. A primeira condição de contorno provém da definição da vazão da mistura isotópica através do elemento de superfície, normal a w e de área $2\pi r dr$, em termos do fluxo da mistura isotópica $\rho_w = pw/RT$ com ρ expresso em mol/cm^3 , e é dado por:

$$2\pi \int_0^{r_2} \frac{\rho_w}{RT} r dr = P \quad (61)$$

onde P é a vazão de produção (mol/s). A segunda condição de contorno re-

sulta da equação de conservação do isótopo desejado:

$$\frac{\partial J_w}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho_{1w} - D \frac{\partial \rho_1}{\partial z} \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{pNw}{RT} - \frac{Dp}{RT} \frac{\partial N}{\partial z} \right) = - \frac{\partial \rho_1}{\partial t} = - \frac{p}{RT} \frac{\partial N}{\partial t}$$

e é dada por:

$$2\pi \frac{\partial}{\partial z} \int_0^{r_2} \left(\frac{pNw}{RT} - \frac{Dp}{RT} \frac{\partial N}{\partial z} \right) r dr = - 2\pi \int_0^{r_2} \frac{p}{RT} \frac{\partial N}{\partial t} r dr \quad (62)$$

Integrando por partes o primeiro termo do primeiro membro desta equação e introduzindo na equação resultante a primeira condição de contorno (61) e a equação (60), obtém-se a equação diferencial parcial da centrífuga contracorrente:

$$\left[\frac{2\pi}{RT} \int_0^{r_2} pr dr \right] \frac{\partial N}{\partial t} = \left[\frac{2\pi}{RT} Dp \frac{r_2^2}{2} + \frac{2\pi}{RT} \frac{1}{Dp} \int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left(\int_0^r pwr dr \right)^2 \right] \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial z} \left[PN + \frac{2\pi}{RT} \frac{(M_2 - M_1) \omega^2}{RT} N(1 - N) \int_0^{r_2} r dr \int_0^r pwr dr \right] \quad (63)$$

A equação (63) pode ser posta na forma:

$$c_6 \frac{\partial N}{\partial t} = c_5 \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} - \frac{\partial}{\partial z} \left[PN + c_1 N(1 - N) \right] \quad (64)$$

onde as constantes c_1 , c_5 e c_6 são dadas por:

$$c_1 = \frac{2\pi}{RT} \frac{(M_2 - M_1) \omega^2}{RT} \int_0^{r_2} r dr \int_0^r pwr dr \quad (65)$$

$$c_5 = c_2 + c_3 = \frac{2\pi}{RT} Dp \frac{r_2^2}{2} + \frac{2\pi}{RT} \frac{1}{Dp} \int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left(\int_0^r pwr dr \right)^2$$

$$c_6 = \frac{2\pi}{RT} \int_0^{r_2} pr dr$$

A equação (64) apresenta a forma típica da equação fundamental da separação de isótopos de uma cascata quadrada, dada por (30). Nestas condições, podemos utilizar diretamente as propriedades desta cascata para o estudo da centrífuga contracorrente, desde que consideremos os valores das constantes c_1 , c_5 e c_6 fornecidas pelas igualdades (65).

3.2. Equação do enriquecimento da centrífuga contracorrente

A equivalência entre a centrífuga contracorrente e a cascata quadrada, que acaba de ser demonstrada, nos autoriza a aplicar à centrífuga contracorrente a equação (34) deduzida no estudo da cascata quadrada. Por



tanto, no estado estacionário em que N não varia em função do tempo, $(\partial N / \partial t) = 0$, para uma centrífuga contracorrente de comprimento Z , a equação de enriquecimento é dada por:

$$\frac{N(Z)}{N(0)} = \frac{(1 + \Psi) \exp [2\varepsilon Z(1 + \Psi)]}{1 + \Psi \exp [2\varepsilon Z(1 + \Psi)]} \quad (66)$$

onde $N(0)$ e $N(Z)$ são as frações molares do isótopo leve (isótopo desejado) nas extremidades do rotor da centrífuga, $\Psi = P/c_1$ e $2\varepsilon = c_1/c_5$, sendo c_1 e c_5 as constantes definidas pelas expressões (65). A equação (66) é válida para um enriquecimento pequeno, de modo que a relação $N(Z)/N(0)$ pode ser considerada igual ao fator de separação total da centrífuga.

A fim de calcular a relação das frações molares do isótopo leve nas extremidades do rotor, ou seja, o enriquecimento da mistura desse isótopo em direção axial, por meio da equação (66), é necessário conhecer as constantes c_1 e c_5 . Estas quantidades dependem da função p_w , que mede o escoamento do gás em ambos os sentidos no interior do rotor. A função p_w é, por sua vez, determinada pelo perfil de escoamento e pela grandeza do escoamento no interior da centrífuga. A teoria, que estamos expondo, não fornece nenhuma indicação sobre a natureza do perfil de escoamento, pois este depende dos detalhes construtivos da centrífuga e do processo de obtenção da contracorrente.

Quanto à grandeza da contracorrente, seu comportamento pode ser investigado, se tornarmos a relação $N(Z)/N(0)$ explícita em relação à vazão da contracorrente mediante a introdução da quantidade L , que é definida por:

$$L = \frac{2\pi}{RT} \int_0^{r_2} |p_w| r dr \quad (67)$$

é mede a soma das vazões do gás num e outro sentido no interior do rotor. Então $\int_0^r (p_w r dr)/L$ não depende de L , de modo que as quantidades $c_1/L = a_1$ e $c_3/L^2 = a_3$ também não variam com L . Substituindo-se agora $\Psi = P/a_1 L$ e $2\varepsilon = a_1 L/(c_2 + a_3 L^2)$ na equação (66), resulta que $N(Z)/N(0)$ se torna uma função de P e L .

Quando a vazão de produção é nula, isto é, $P = 0$ (refluxo total), a equação (66) mostra que $N(Z)/N(0)$ apresenta o maior valor para qualquer valor de L . Neste caso, da equação (66) e do valor de 2ε dado em termos de L , obtém-se:

$$\frac{N(Z)}{N(0)} = \exp 2\varepsilon Z = \exp \left(\frac{a_1 L}{c_2 + a_3 L^2} Z \right) \quad (68)$$

Esta equação permite agora investigar o comportamento da quantidade L , que mede, através da definição (67), a grandeza da contracorrente no interior do rotor. De fato, variando-se L , verifica-se que a função $a_1 L / (c_2 + a_3 L^2)$ apresenta um máximo para um certo valor de $L = L_0$, dado por:

$$L_o = \sqrt{\frac{c_2}{a_3}} = \frac{2\pi r_2 \frac{D_p}{RT} \int_0^{r_2} p w |r dr}{\sqrt{2 \int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left(\int_0^r p w r dr \right)^2}} \quad (69)$$

A este valor L_o corresponde então o valor máximo possível de $N(Z)/N(0)$ que se obtém quando $P = 0$ para um dado tipo de escoamento em contracorrente; este dado é dado por:

$$\frac{N(Z)}{N(0)} = \exp 2 \epsilon_o Z \quad (70)$$

sendo $2 \epsilon_o$ o máximo da função $a_1 L / (c_2 + a_3 L^2)$, que é igual a:

$$2 \epsilon_o = \frac{a_1 L_o}{c_2 + a_3 L_o^2} = \frac{a_1}{2\sqrt{c_2 a_3}} = \frac{(M_2 - M_1) \frac{\omega^2}{RT} \int_0^{r_2} r dr \int_0^r p w r dr}{2 r_2 \sqrt{2 \int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left(\int_0^r p w r dr \right)^2}} \quad (71)$$

Quando não há produção, existe portanto um enriquecimento máximo ou um valor máximo ou ϵ_o que corresponde a um certo valor ótimo L_o da vazão da contracorrente no interior do rotor.

A existência do máximo de ϵ ou de $N(Z)/N(0)$ é interpretada fisicamente através do fenômeno da difusão de retorno. Assim, quando a vazão da circulação total no interior do rotor L é grande, o valor de ϵ e, portanto, o gradiente de concentração axial ou $N(Z)/N(0)$ são pequenos, pois ϵ varia inversamente com L . Neste caso a difusão de retorno é pequena (c_2 , que depende da difusão de retorno, é muito menor do que $a_3 L^2$). Quando a vazão de circulação interna L é pequena e, portanto, o gradiente de concentração ϵ são grandes, a difusão de retorno é também grande. Então, a medida que L diminui, aumenta a difusão de retorno, a qual finalmente limita o grau de separação, não permitindo mais um aumento posterior do enriquecimento ou de ϵ . Nestas condições, entre valores muito grandes e muito pequenos de L , existe um valor de L_o que torna a separação máxima, quando a produção é nula.

Em vista da existência de L_o , é conveniente exprimir as vazões de circulação interna do gás em termos deste valor por meio de $m = L/L_o$. Então, resulta que $2 \epsilon = 2 \epsilon_o 2m/(1+m^2)$ e a equação (66) se torna:

$$\frac{N(Z)}{N(0)} = \frac{(1+\psi) \exp \left[2 \epsilon_o Z \left(\frac{2m}{1+m^2} \right) (1+\psi) \right]}{1 + \psi \exp \left[2 \epsilon_o Z \left(\frac{2m}{1+m^2} \right) (1+\psi) \right]} \quad (72)$$

Em termos dos parâmetros sem dimensão m e ψ , P é dado por:

$$P = m P_0 \psi \quad (73)$$

sendo

$$P = 4\pi \epsilon_0 r^2 \frac{D_p}{RT} \quad (74)$$

As equações (69) a (74), com exclusão da equação (70), descrevem completamente o comportamento da centrífuga contracorrente, quando opera em condições de produção. Conhecido o perfil de escoamento p_w e medido experimentalmente L , pode-se então calcular, através destas equações, o enriquecimento fornecido pela centrífuga para vazões de produção desejadas.

3.3. Potencial de separação da centrífuga contracorrente

Considerando que a centrífuga contracorrente se comporta como uma cascata quadrada, seu potencial de separação pode ser calculado através da equação (36), apresentada no estudo desta cascata. Assim, para uma centrífuga contracorrente de comprimento Z , o potencial de separação é

$$\delta U = \frac{c_1^2}{4c_5} Z \quad (75)$$

Em termos da vazão total da contracorrente no interior do rotor L e de $m = L/L_0$ esta equação pode ser escrita sob a forma:

$$\delta U = \frac{a_1^2 L^2 Z}{4(c_2 + c_3 L^2)} = \frac{a_1^2 Z}{4a_3} \left(\frac{m^2}{1+m^2} \right) = \frac{c_1^2}{4c_3} Z \left(\frac{m^2}{1+m^2} \right) \quad (76)$$

Substituindo na equação (76) os valores das constantes c_1 e c_3 , dados pelas equações (65) resulta:

$$\delta U = \frac{D_p}{RT} \left[\frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r_2^2}{2RT} \right]^2 \left[\frac{\frac{2}{r_2^2} \int_0^{r_2} r dr \int_0^r p_w dr}{\int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left[\int_0^r p_w dr \right]^2} \right]^2 \frac{\pi Z}{2} \frac{m^2}{1+m^2} \quad (77)$$

As equações (76) e (77) mostram que o potencial de separação da centrífuga contracorrente atinge o maior valor quando $m^2/(1+m^2)$ tende para a unidade, o que ocorre quando $m \rightarrow \infty$, isto é, quando L se torna infinitamente grande. Neste caso, porém, o fator de separação apresenta um valor muito pequeno, como foi visto na discussão anterior. Por outro lado, o fator de separação máximo é obtido quando $L = L_0$, isto é,

quando $m = 1$. Esta vazão de circulação não é, porém, a mais eficiente do ponto de vista do potencial de separação, como se pode observar nas equações (76) e (77) ou da consideração da difusão de retorno. De fato, para $N(Z)/N(0)$ ser máximo, L_0 não pode ser muito grande e neste caso, já é necessário levar em conta a difusão de retorno, que diminuindo o transporte do material desejado através da centrífuga, diminui o potencial de separação. Nestas condições, é conveniente aumentar L para diminuir a difusão de retorno e assim aumentar δU , embora com isto ocorra uma diminuição do fator de separação. Por outro lado, esta diminuição não é tão pronunciada, pois δU se aproxima rapidamente do seu valor limite com o aumento de L . Assim, quando $m = 3$ e $m = 5$ se obtém, respectivamente, 90% e 96% do maior valor de δU e para estes valores de m , os gradientes de concentração ainda são iguais a 60% e 38% de seu valor máximo, respectivamente. Portanto, é possível conciliar a vantagem de enriquecimentos relativamente grandes numa só unidade contracorrente com potenciais de separação ainda bastante elevados.

3.4. A centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica

Na centrífuga a gás de contracorrente estabelecida por convecção térmica, a circulação do gás no interior do rotor é produzida pelo aquecimento de uma das tampas do rotor e pelo resfriamento simultâneo da outra tampa. Para explicar a origem desta circulação vamos recorrer à interpretação dada por MARTIN (19), considerando inicialmente a ação de um campo gravitacional intenso sobre o gás presente entre duas placas verticais mantidas numa temperatura superior à do gás. A convecção térmica, por meio da qual o gás se desloca em sentido contrário ao do campo, vem, neste caso, acompanhada de uma forte expansão adiabática do gás, em virtude do acentuado aumento da pressão que ocorre no sentido do campo. O resfriamento do gás, que se produz nesta expansão deverá ser então compensado pelo fornecimento de calor proveniente das placas quentes. Como esta condição sómente poderá ser satisfeita com suficiente rapidez nas vizinhanças imediatas das placas, a convecção se dá apenas nas paredes das placas e não no interior do gás. Consequentemente, o deslocamento do gás vai ocorrer somente numa camada muito fina adjacente às paredes das duas placas, desde que estas se encontrem suficientemente afastadas. O sentido deste escoamento gasoso será o oposto ao do campo gravitacional intenso, quando a temperatura do gás é inferior à das placas. Nestas condições, se as duas placas forem mantidas em temperaturas diferentes, uma ligeiramente inferior e outra ligeiramente superior à do gás, segue-se desta interpretação que uma camada muito fina de gás adjacente à placa quente deve deslocar-se em sentido contrário ao do campo, enquanto que, adjacente à placa fria, deve ocorrer simultaneamente um deslocamento análogo de gás, porém no mesmo sentido do campo.

Suponhamos, agora, que as placas consideradas sejam as tampas do rotor de uma centrífuga, no interior da qual se encontra um gás. Então, devido à ação do campo centrífugo, o gás escoa ao longo da tampa quente da periferia para o eixo do rotor, isto é, em sentido contrário ao do campo. A medida que esta corrente gasosa se aproxima do eixo, uma parte do gás se dirige em direção axial à outra tampa do rotor mantida numa temperatura inferior à do gás, como mostra a Figura 4, na página seguinte. O escoamento axial ocorre porque a velocidade de escoamento radial e, portanto, a quantidade de gás transportada na direção radial, diminui da periferia para o eixo, segundo a teoria proposta por MARTIN (19). Ao mesmo tempo o gás escoa ao longo da tampa fria do eixo para a

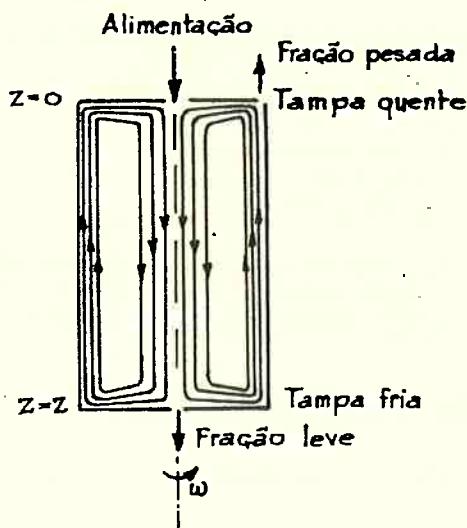


Figura 4 - Esquema da centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica

periferia e, à medida que alcança a parede do rotor, uma parte do gás se dirige em direção axial para a tampa quente, uma vez que o transporte de material aumenta com o raio. Nestas condições, as diferentes correntes gasosas parciais que se deslocam em direção axial da tampa quente para a tampa fria, após seu percurso ao longo da última, devem reunir-se sob a forma de uma corrente gasosa total a qual se dirige ao longo da parede do rotor para a tampa quente. Desta maneira, estabelece-se, por convecção térmica, a circulação em contracorrente no interior do rotor, a qual é apresentada esquematicamente na Figura 4.

Quando o gás presente no interior do rotor é uma mistura isotópica, a contracorrente, assim formada, determina o enriquecimento da mistura em isótopo leve na tampa fria, enquanto que o isótopo pesado se concentra na tampa quente. O gás enriquecido do isótopo leve, ou produto da separação, é agora retirado da tampa fria, para a qual $z = Z$ (comprimento do rotor), e o gás empobrecido deste isótopo, ou o rejeito, é removido da tampa quente, para a qual $z = 0$, a alimentação da centrífuga com a mistura de composição isotópica natural sendo realizada na tampa quente, como mostra o esquema da Figura 4.

3.5. Estudo do perfil de escoamento

O fator de separação ou enriquecimento axial $N(Z)/N(0)$ de qualquer centrífuga contracorrente é dado pelas equações (66) ou (72) e, no caso de refluxo total, pela equação (68), enquanto que seu potencial de separação é expresso pela equação (77). A análise destas equações mostra que o cálculo do enriquecimento e do potencial de separação exige o conhecimento do perfil de escoamento $p_w(r)$ do gás no interior do rotor.

A fim de investigar a influência deste perfil na separação de isótopos, realizada por uma centrífuga contracorrente, convém definir por

por coeficiente do perfil de escoamento, a relação:

$$K = \frac{\left[\frac{2}{r_2^2} \int_0^{r_2} r dr \int_0^r pwr dr \right]^2}{\int_0^{r_2} \frac{dr}{r} \left(\int_0^r pwr dr \right)^2} \quad (78)$$

que depende apenas do perfil de escoamento da contracorrente no interior do rotor, isto é, da relação entre p_w e r , e não do valor absoluto da contracorrente. Com o auxílio desta definição e da equação (58), a equação (77) se torna:

$$\delta U = (\delta U)_{\max} K m^2 / (1 + m^2) \quad (79)$$

Analogamente, através da definição de K , a equação (71) pode ser posta na forma:

$$2 \epsilon_o = \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \frac{1}{2r_2} \sqrt{2} \sqrt{K} \quad (80)$$

A equação (79) e as equações (70) ou (72), combinadas com a equação (80), fornecem, respectivamente, o potencial de separação e o enriquecimento da centrífuga contracorrente em termos do coeficiente do perfil de escoamento.

O conhecimento exato do perfil de escoamento no interior do rotor de uma centrífuga contracorrente constitui, do ponto de vista hidrodinâmico, um problema de solução extremamente complexa. Por este motivo é preferível abordar inicialmente o perfil de escoamento ótimo e, a seguir, recorrer a modelos simplificados de perfis de escoamento para os quais é possível calcular o valor de K .

O perfil de escoamento ótimo, que permite obter o máximo potencial de separação em qualquer tipo de centrífuga contracorrente, é definido segundo LOS E KISTEMAKER (38) através da igualdade entre o gradiente de concentração radial da centrífuga contracorrente, dado pela equação (60), e o gradiente de concentração radial que conduz ao potencial de separação máximo, expresso pela equação (55). Resulta, então, que para este perfil de escoamento a integral $\int pwr dr$ é proporcional a r^2 . Para que esta condição seja satisfeita LOS E KISTEMAKER, concluem que: (1) p_w deve ser constante em relação a r e (2) a superfície cilíndrica neutra, a qual separa a corrente num sentido da corrente em sentido contrário ($w = 0$) deve estar situada o mais próximo possível da parede do rotor.

Introduzindo a condição da proporcionalidade entre a integral citada e r^2 na equação (78), obtém-se $K = 1$. Então, para o perfil de escoamento ótimo, o potencial de separação é dado por:

$$(\delta U)_{ot} = (\delta U)_{\max} m^2 / (1 + m^2) \quad (81)$$

que se torna igual ao valor máximo teórico $(\delta U)_{\max}$ quando $m \rightarrow \infty$, e

o valor de $2 \varepsilon_0$ é expresso por:

$$2 \varepsilon_0 = \frac{(M_2 - M_1)(\omega r)^2}{2RT} \cdot \frac{1}{2r_2} \sqrt{2} \quad (82)$$

Neste caso, da equação (70) segue-se que o enriquecimento em refluxo total se torna igual a:

$$\left[\frac{N(Z)}{N(0)} \right]_{ot} = \exp \frac{(M_2 - M_1)(\omega r)^2}{2RT} \cdot \frac{Z}{2r_2} \sqrt{2} \quad (83)$$

Esta equação fornece o máximo enriquecimento que pode ser obtido teoricamente numa centrífuga contracorrente, pois no caso em questão a centrífuga opera em refluxo total e a contracorrente no interior do rotor apresenta, não somente o perfil de escoamento ótimo ($K = 1$), como também a vazão ótima ($L = L_0$).

O modelo simplificado, que traduz de forma adequada o perfil do escoamento no interior da centrífuga de contracorrente governada por convecção térmica, é o perfil de escoamento de Martin. Este perfil provém da teoria de MARTIN (19), segundo a qual a vazão radial de um gás num campo gravitacional intenso e entre duas placas em temperaturas diferentes, calculada com grande aproximação, é proporcional a grandeza $r^{1/2} \exp(M\omega^2 r^2 / 4RT)$. Na centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica, na qual se admite que as únicas correntes gasosas radiais são as existentes nas proximidades das tampas do rotor, esta vazão deve ser igual à vazão que escoa na direção axial entre a superfície cilíndrica de raio r e a superfície cilíndrica neutra. Portanto, o perfil de escoamento de Martin deve satisfazer à condição expressa pela proporcionalidade entre a integral $\int_0^r (pw/RT) 2\pi r dr$ e a grandeza $r^{1/2} \exp(M\omega^2 r^2 / 4RT)$. Resulta desta condição que a superfície cilíndrica neutra ($w = 0$) se encontra situada nas proximidades da parede do rotor e, tanto mais próxima desta parede quanto mais pesada for a mistura gasosa a ser separada e quanto maior for a velocidade de rotação. Introduzida esta condição na equação (78), obtém-se o coeficiente do perfil de escoamento de Martin, dado por:

$$K_M = \frac{\left[\frac{2}{r_2^2} \int_0^{r_2} r^{3/2} \exp \frac{M\omega^2 r^2}{4RT} dr \right]^2}{\int_0^{r_2} \exp \frac{M\omega^2 r^2}{4RT} dr} \quad (84)$$

Então, para o perfil de escoamento de Martin, o potencial de separação é:

$$(\delta U)_M = (\delta U)_{max} K_M m^2 / (1 + m^2) \quad (85)$$

e a quantidade $2 \varepsilon_0$ apresenta o valor

$$(2 \epsilon_o)_M = \frac{(M_2 - M_1)(\omega r)^2}{2RT} \frac{1}{2r_2} \sqrt{2} \sqrt{K_M} \quad (86)$$

de modo que o enriquecimento em refluxo total é:

$$\left[\frac{N(Z)}{N(0)} \right]_M = \exp \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \frac{Z}{2r_2} \sqrt{2} \sqrt{K_M} \quad (87)$$

Utilizando o perfil de escoamento de Martin, LOS E KISTEMAKER (38) obtiveram para a centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica, que foi desenvolvida como modelo UZIIB por GROTH e colaboradores (11), um valor de $K_M = 0,95$, quando a centrífuga opera com hexafluoreto na velocidade periférica de 250 m/s. Nestas condições o potencial de separação obtido com o perfil de escoamento de Martin é, pois, igual a 95% do potencial de separação correspondente ao perfil de escoamento ótimo. Neste caso os dois perfis de escoamento são praticamente coincidentes. Para velocidades periféricas maiores, aumenta a diferença entre os dois perfis. Assim, para o hexafluoreto de urânia, resulta da equação (84) que os valores do coeficiente do perfil de escoamento de Martin são iguais a 0,90, na velocidade periférica de 300 m/s, e 0,67, na velocidade periférica de 400 m/s.

A partir da equação (72) e com os dados experimentais obtidos com a centrífuga contracorrente UZIIB, LOS E KISTEMAKER estimaram, ainda, que $m = 2,17$. Substituindo este valor na equação (85) com $K_M = 0,95$, resulta então que o potencial de separação com o perfil de escoamento de Martin é igual a $0,77 (\xi_U)_{max}$. Experimentalmente, o maior valor do potencial de separação encontrado por GROTH e colaboradores (11) é $0,74 (\xi_U)_{max}$. Nestas condições, no caso do hexafluoreto de urânia e nas condições de operação utilizadas, o perfil de escoamento da corrente no interior do rotor concorda satisfatoriamente com o perfil de escoamento de Martin, o qual, por sua vez, não diverge muito do perfil ótimo. Todavia, convém mencionar que esta concordância se verifica apenas no caso considerado, em que a velocidade periférica é 250 m/s. A diferença entre o perfil de escoamento de Martin e o ótimo se torna tanto mais pronunciada quanto maior for a velocidade periférica da centrífuga, como já foi citado, e quanto maior for a massa molecular do gás.

A influência do perfil de escoamento foi também analisada teoricamente por KANAGAWA, OYAMA e TAKASHIMA (34), que calcularam os valores de K para o perfil de escoamento em que p_w é constante em ambas as correntes gasosas, para o perfil de escoamento de Martin e para o perfil utilizado por STEENBECK (21). No caso do modelo de Martin, estes investigadores apresentam os valores de K em função de $M\omega^2 r^2 / 4RT$ e mostram que K passa por um máximo igual a 0,96, quando a quantidade $M\omega^2 r^2 / 4RT$ é igual a 1,85. Para o hexafluoreto de urânia, este máximo correspondente a uma velocidade periférica de 245 m/s, explicando, assim, a concordância entre os perfis de escoamento, que se verifica nas experiências de separação realizadas por GROTH e colaboradores.

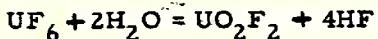
CAPÍTULO II

HEXAFLUORETO DE URÂNIO UTILIZADO

O hexafluoreto de urânio, UF_6 , é o único composto volátil es-tável de urânio, razão pela qual é utilizado como matéria prima nos pro-cessos de separação dos isótopos de urânio que são realizados em fase ga-sosa. Na temperatura ambiente, o hexafluoreto de urânio é um sólido cris-talino incolor (53), que apresenta uma pressão de vapor de 115 Torr, ao con-trário do que ocorre com todos os outros compostos estáveis de urâ-nio, os quais apresentam pressões de vapor de apenas alguns Torr em tem-peraturas inferiores a 100°C (54).

O ponto triplo do hexafluoreto de urânio é igual a 64,02°C na pressão de 1137 Torr (55). Nestas condições, na temperatura ambiente e sob a pressão atmosférica, o composto sólido sublima diretamente, en-quanto que, em pressões e temperaturas superiores às do ponto triplo, funde na forma de um líquido incolor de grande densidade.

Do ponto de vista químico, o hexafluoreto de urânio é um com-posto extremamente corrosivo, que ataca um grande número de metais e os materiais de construção usuais. Além disto, em presença de traços de água, sofre uma hidrólise rápida com formação de ácido fluorídrico, se-gundo a reação:



A combinação destas propriedades corrosivas e hidrolíticas, que constitui um sério inconveniente nos trabalhos com este composto, torna obrigató-rio o emprêgo de equipamento de aço inoxidável, níquel ou monel e a utili-zação de alto vácuo a fim de efetuar, da maneira mais completa possível, a remoção da umidade presente no equipamento, o qual, por sua vez, de-ve ser estanque a alto vácuo.

Por outro lado, do ponto de vista da separação dos isótopos de urânio, o hexafluoreto apresenta a vantagem de ser formado de um dos poucos elementos que não possuem isótopos, a saber, o flúor. Por este mo-tivo, o composto em questão pode ser considerado simplesmente como sendo uma mistura binária de moléculas isotópicas de urânio.

O hexafluoreto de urânio utilizado na presente investigação, de procedência norte-americana, encontra-se armazenado em cilindros de monel de 5" de diâmetro externo e de 55 lb de capacidade. Como os tra-balhos de separação de isótopos e de espectrometria de massas exigiam o emprêgo de uma quantidade relativamente pequena deste material, mas de elevado grau de pureza, tornou-se necessário considerar (1) a transfe-rencia do material de um destes cilindros de armazenamento a recipien-tes de menor capacidade; (2) a determinação da pureza do material trans-ferido e (3) a eventual purificação do material.

No presente capítulo temos assitn em vista apresentar inicialmente os fundamentos teóricos da transferência, purificação e determinação da pureza de hexafluoreto de urânia. A seguir, descreveremos o sistema que foi construído com a finalidade de realizar estas operações, assim como as transferências e as purificações efetuadas com o material de procedência norte-americana.

1. TRANSFERÊNCIA E PURIFICAÇÃO DE HEXAFLUORETO DE URÂNIO

A transferência de hexafluoreto de urânia de um recipiente a outro é usualmente realizada pelo escoamento gravitacional do material em fase líquida ou pelo escoamento do material na fase de vapor, determinado por diferenças de pressão (56). O primeiro processo requer o aquecimento do material em recipiente fechado a temperaturas superiores à do ponto triplo, de modo a tornar possível a passagem de hexafluoreto de urânia em estado líquido, de um a outro recipiente pela ação da gravidade. No segundo processo, a passagem de vapor de hexafluoreto de urânia de um a outro recipiente é obtida através da sublimação do material no primeiro e da condensação do vapor no segundo recipiente. Mantendo-se o recipiente de condensação em uma temperatura muito mais baixa do que a do recipiente de sublimação consegue-se estabelecer o gradiente de pressão necessário ao escoamento em fase gasosa.

As impurezas, que usualmente se encontram no hexafluoreto de urânia, são o ácido fluorídrico e outros fluoretos. A presença e a quantidade destas impurezas podem ser determinadas por medidas crioscópicas ou por medidas de pressão de vapor (53). A determinação da pureza do material, através da medida da pressão de vapor, se baseia no fato de que a presença de ácido fluorídrico, que constitui a principal impureza, aumenta consideravelmente a pressão de vapor do material, pois este ácido é pouco solúvel no UF₆. A pressão de vapor de hexafluoreto de urânia puro a 0°C é igual a 17,57 Torr, segundo as determinações precisas realizadas por OLIVER, MILTON e GRISARD (55). Se o material apresentar 1% de ácido fluorídrico como impureza, o aumento de pressão é igual a 12,0 Torr nesta temperatura (53). Nestas condições, a pureza de hexafluoreto pode ser facilmente controlada por meio da medida da pressão de vapor a 0°C. Para a identificação de pequenas quantidades de ácido fluorídrico o método do abaixamento do ponto de congelação é mais preciso do que o anterior. Neste caso a determinação da pureza do material se baseia no fato de que a constante crioscópica de UF₆ é 0,065°C por 0,01% de HF, enquanto que o valor teórico, computado da lei de Raoult, é 0,0839°C (53).

A purificação do hexafluoreto de urânia pode ser realizada por meio da sublimação em vácuo ou da destilação sob pressão. Ambos os processos foram utilizados por GROTH e colaboradores (11). No processo da sublimação descrito por estes pesquisadores, o hexafluoreto de urânia impuro é mantido em temperaturas suficientemente baixas, a fim de apresentar uma pressão de vapor da ordem de alguns décimos de Torr. A transferência deste material é então realizada por sublimação em alto vácuo, de modo que o hexafluoreto condensa num recipiente resfriado na temperatura do gelo seco (-80°C), na qual sua pressão de vapor é igual a 10⁻³ Torr. Ao mesmo tempo, as impurezas mais voláteis, como o ácido fluorídrico, são bombeadas continuamente pela ação de uma bomba de alto vácuo a um segundo recipiente, que se encontra na temperatura de ar ou nitrogênio líquido (-180°C). Como estas impurezas não condensam na

temperatura do gêlo seco, obtém-se assim sua separação do hexafluoreto condensado no primeiro recipiente. Segundo GROTH e colaboradores (11), através de duas sublimações sucessivas, efetuadas desta maneira, foi possível purificar um produto impuro que a 0°C apresentava a pressão de vapor de 40 Torr, de modo a obter-se um produto final puro com a pressão de vapor de 17,6 Torr a 0°C. A destilação sob pressão, realizada numa coluna de retificação, também permite remover o ácido fluorídrico e outros fluoretos do hexafluoreto de urânio, como mostraram as investigações experimentais do equilíbrio líquido-vapor levadas a efeito por JARRY e colaboradores (57) e ELLIS e JOHNSON (58). Com a instalação de destilação construída por GROTH e colaboradores (11), foi possível a obtenção de hexafluoreto puro, a partir de um material extremamente impuro que a 0°C apresentava a pressão de vapor de 300 Torr. O processo da destilação é mais eficiente do que o da sublimação, quando se trata da remoção de elevados teores de impurezas e, além disto, permite a obtenção de maiores quantidades do produto puro em intervalos de tempo mais curtos.

Dada a necessidade de manusear apenas pequenas quantidades de UF₆ e levando em conta a menor complexidade do processo, assim como a maior facilidade de construção do equipamento necessário à sua realização prática, optamos pelo processo da sublimação para efetuar a transferência e a purificação do material. Pelas mesmas razões, escolhemos o método da medida da pressão de vapor para determinar a pureza do material assim transferido. A fim de realizar estas três operações em uma única aparelhagem e conduzi-las em alto vácuo, foi projetado e construído o sistema de transferência e purificação de hexafluoreto de urânio, que passaremos a descrever.

2. DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE TRANSFERÊNCIA E PURIFICAÇÃO DE UF₆

O sistema de transferência e purificação foi projetado de modo que todas as suas partes, que entram em contato com o hexafluoreto de urânio, são confeccionadas de aço inoxidável 18/8, tipo 316, por ser este um dos materiais de construção que melhor resistem à ação corrosiva do composto em questão. Para tornar possível a realização do alto vácuo e, ao mesmo tempo, evitar a entrada de ar durante sua operação, todo o sistema foi instalado de modo a ser estanque a alto vácuo.

A fim de satisfazer as finalidades previstas, o sistema construído se compõe de quatro partes, a saber: (1) a secção de produção e medida do alto vácuo, (2) a secção de transferência, (3) a secção de sublimação e (4) a secção de medida da pressão de vapor. A Figura 5 apresenta estas diferentes secções e seu esquema de ligação.

A secção de produção e medida al alto vácuo se compõe da bomba de vácuo rotativa B₁, da bomba de difusão B₂, do balão de vidro R, dos manômetros de mercurio M₁ e M₂, dos "traps" T, T' e T₁, do medidor de alto vácuo P, das torneiras de vidro de alto vácuo 1-12 e das válvulas metálicas de alto vácuo 30, 31 e 32. Estes elementos, com exceção das válvulas metálicas e do "trap" T₁, se encontram ligados entre si por meio de tubos de vidro "pyrex".

O alto vácuo de todo o sistema é produzido pela bomba de difusão de mercúrio B₂, modelo Hg3 da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alema), que apresenta uma velocidade de succão de 3 l/s. A bomba de vácuo rotativa B₁, modelo PH3 da firma Arthur Pfeiffer GmbH

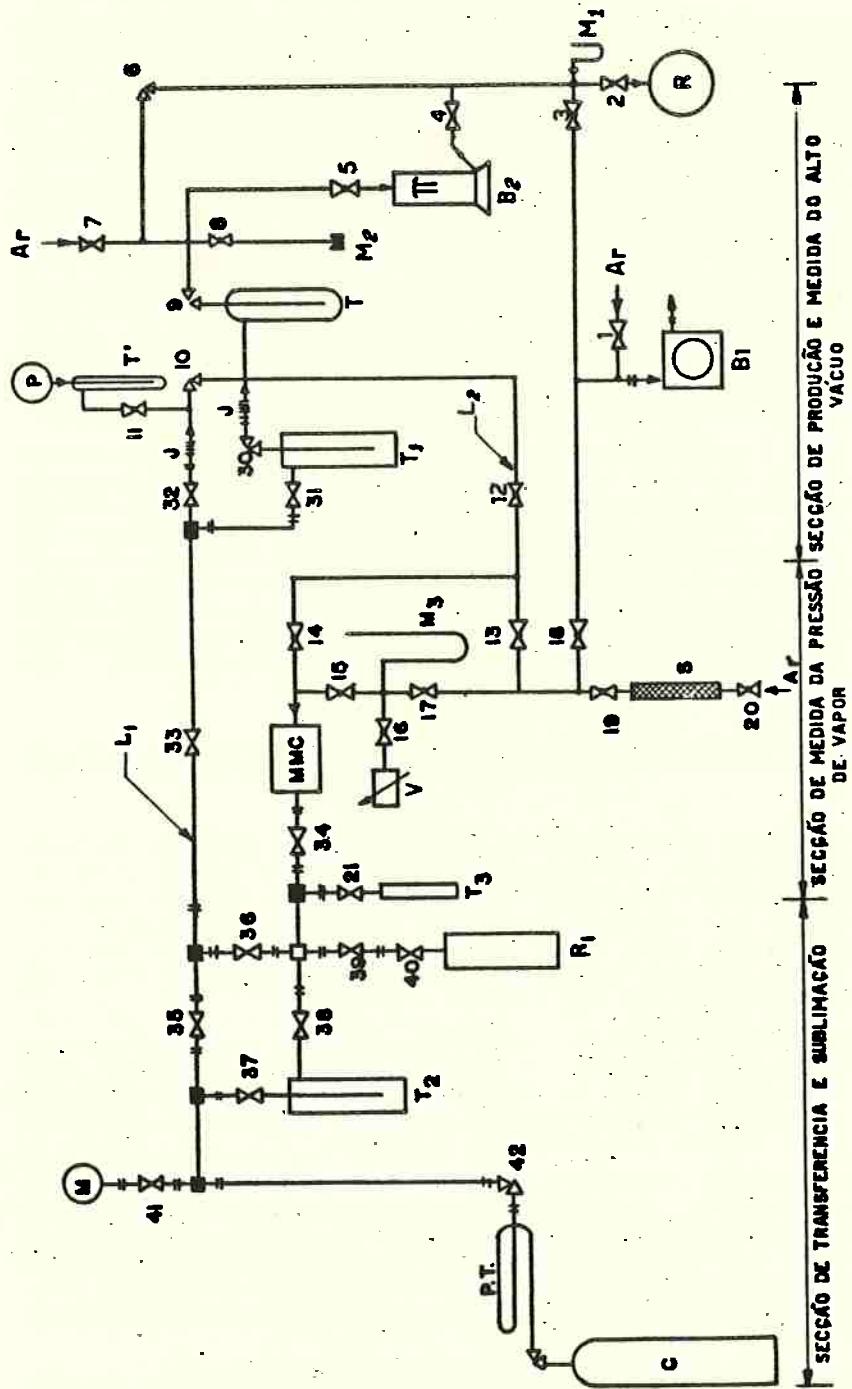


Figura 5 - Esquema do sistema de transferência e purificação de UF_6

(República Federal Alemã), com velocidade de bombeamento de $2,5 \text{ m}^3/\text{h}$, destina-se a estabelecer o pré-vácuo ou o vácuo primário necessário ao funcionamento da bomba de difusão. Por meio da linha de "by pass", que contém a torneira 6, a bomba de vácuo rotativa permite também colocar em vácuo primário qualquer uma das secções da instalação, quando se encontram fechadas as torneiras 4 e 5; deste modo evita-se o escoamento gásoso através da bomba de difusão. O balão de expansão R, de 6 litros de capacidade, tem por finalidade garantir o funcionamento da bomba de difusão por períodos de tempo longos, quando a bomba rotativa está desligada e a torneira 3 se encontra fechada. A torneira 1 destina-se a permitir a entrada de ar na bomba rotativa após seu desligamento, evitando assim a entrada do óleo na instalação. A torneira 7 também permite a entrada de ar na secção de alto vácuo, quando isto se torna necessário. Os manômetros de mercúrio M_1 e M_2 , que medem o vácuo produzido, respectivamente, pelas bombas rotativa e de difusão, têm por finalidade acusar vazamentos na secção de alto vácuo. A torneira 8 evita a entrada de vapores de mercúrio, provenientes do manômetro M_2 , no "trap" T.

O alto vácuo é realizado nas outras secções do sistema a partir do "trap" de vidro T, imerso em nitrogênio líquido, mediante a abertura da torneira 9. A finalidade deste "trap" é a de condensar os vapores de mercúrio da bomba de difusão. Por meio da torneira 10 a secção de produção de alto vácuo se comunica então, diretamente, com a secção de transferência e de sublimação, enquanto que a torneira 12 estabelece a ligação com a secção de medida da pressão de vapor. O alto vácuo de toda a instalação é medido por meio da válvula Penning, da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), quando a torneira 11 se encontra aberta. A válvula Penning se encontra ligada, por meio de uma junta cônica, ao "trap" de vidro T, refrigerado por nitrogênio líquido. Todos os componentes da secção de produção de alto vácuo até aqui mencionadas, com exceção das bombas, são de vidro "pyrex".

Durante a operação do sistema, a secção de produção do alto vácuo é posta em comunicação com a secção de transferência e de sublimação através do "trap" de aço inoxidável T_1 , imerso em nitrogênio líquido, e da tubulação metálica que contém a válvula 31, estando então fechadas a torneira 10 e a válvula 32. O "trap" T_1 destina-se a condensar as impurezas voláteis, que acompanham o hexafluoreto de urânia, e também retém as pequenas quantidades de hexafluoreto, que provêm dos "traps" das secções, de transferência e de sublimação. O material condensado no "trap" em questão permanece nele após a operação, mediante o fechamento das válvulas 30 e 31. Nestas condições, a função do "trap" T_1 é também proteger a aparelhagem de vidro da secção de produção e medida do alto vácuo. Graças a esta precaução, estando fechada a válvula 32 e abertas as válvulas 30 e 31, o alto vácuo nas secções de transferência e de sublimação pode ser continuamente medido durante a operação pela válvula Penning, quando se encontram abertas as torneiras 10 e 11. A ligação das válvulas 30 e 32 com os tubos de vidro, da secção de produção e medida do alto vácuo, é realizada por meio das juntas cônicas metal-vidro J, providas de um fole metálico elástico, estanque a alto vácuo, que se destina a evitar a quebra dos tubos de vidro.

As secções de transferência e de sublimação se encontram ligadas à linha de alto vácuo metálica L_1 , na qual se obtém o alto vácuo mediante a abertura da válvula 33. A secção de transferência se compõe do "pigtail" de cobre PT, do manômetro M que se comunica com a válvula 41, do reservatório R₁ ligado à válvula 40 e da tubulação metálica que con-

tém as válvulas 42, 35, 36 e 39. O cilindro de monel C, que contém o hexafluoreto de urânio, se encontra ligado ao "pigtail" e este à linha de alto vácuo L₁. O hexafluoreto de urânio, quando puro, é transferido do cilindro C, através das válvulas 35 e 36, ao reservatório R₁ por sublimação, depois de estabelecido o alto vácuo na linha L₁. Nesta operação, o recipiente R₁ é refrigerado na temperatura do gelo seco e o cilindro C é mantido na temperatura ambiente. A vazão de vapor de hexafluoreto é ajustada com a válvula 42 e a pressão do vapor é medida com o manômetro de membrana de aço inoxidável M, da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), após a abertura da válvula 41. Terminada a operação, o reservatório R₁ pode ser retirado da aparelhagem, depois de fechadas as válvulas 39 e 40. As pequenas quantidades de hexafluoreto que permanecem na linha L₁ são então recolhidas no "trap" T₁, refrigerado por nitrogênio líquido.

A secção de sublimação consta do "trap" de aço inoxidável T₂, ligado às válvulas 37 e 38, e da tubulação que apresenta estas válvulas e a válvula 36. Estando fechada a válvula 35, a purificação do hexafluoreto de urânio, contido no cilindro de monel C, é realizada nesta secção por sublimação do material deste cilindro, mantido na temperatura ambiente e por condensação de hexafluoreto no "trap" T₂, refrigerado pela mistura gelo seco-metanol. Simultaneamente, as impurezas mais voláteis são aspiradas através das válvulas 38 e 36 e da linha de alto vácuo L₁ pela bomba de difusão e se condensam no "trap" T₁, resfriado por nitrogênio líquido. Durante esta operação, a velocidade de sublimação é controlada pelo manômetro M e o alto vácuo da instalação é medido pela válvula Penning P. Terminada a operação e medida a pureza do material condensado no "trap" T₂, este material é transferido por sublimação ao reservatório R₁, previamente posto em alto vácuo. Este recipiente, contendo o hexafluoreto puro, pode ser então retirado da instalação.

No esquema apresentado na figura 5 está também prevista a possibilidade de sublimações sucessivas do reservatório R₁ ao "trap" T₂, e vice-versa. Assim no caso de não apresentar a pureza desejada após a primeira sublimação, o material, depois de transferido ao recipiente R₁, pode ser resublimado neste recipiente e condensado no "trap" T₂, segundo o procedimento anterior. Neste caso a transferência do vapor é realizada através das válvulas 40, 39 e 38, estando fechada a válvula 36, enquanto que as impurezas que não condensam em T₂ são removidas pela bomba de difusão através da válvula 35.

A medida da pressão de vapor de hexafluoreto de urânio pode ser realizada com um manômetro de membrana, desde que a membrana seja confecionada de um material que resista à ação corrosiva do hexafluoreto. Todavia, dada a imprecisão das medidas que usualmente se obtêm com este tipo de manômetros, é necessário utilizar o método de compensação, quando se deseja usar a pressão de vapor como critério de pureza. Este método consiste em admitir o vapor de hexafluoreto de urânio num dos lados da membrana do manômetro e compensar a pressão exercida pelo vapor com a introdução de ar ou nitrogênio no outro lado da membrana. O manômetro funciona então como instrumento de ponto zero e a medida da contra-pressão, feita com um manômetro de mercurio, fornece a precisão desejada.

Baseada neste princípio, a secção de medida da pressão de vapor, da Figura 5, se compõe do manômetro MMC, do manômetro de mercurio M₃, do recipiente de volume variável V, do secador S, do "trap" me-

tálico T₃, ligado à válvula 21, da tubulação metálica, que contém a válvula 34 e da tubulação de vidro que, ligada à linha de vácuo de vidro L₂, apresenta as torneiras 13-18.

O manômetro de membrana MMC é um manômetro de membrana capacitiva, construído pela firma Atlas-Werke A.G. (República Federal Alemã) e descrito por DRAWIN (59). Este manômetro foi escolhido por satisfazer às seguintes condições: (1) a membrana, de aço inoxidável, resiste à ação do UF₆, (2) o manômetro é estanque a alto vácuo e ambas as câmaras separadas pela membrana podem ser postas em vácuo e (3) o manômetro pode ser usado da maneira convencional e permite leituras até 2,5 e 20 Torr, quando uma das câmaras se encontra em vácuo. O manômetro de mercúrio M₃ se encontra de frente de uma escala de aço inoxidável polida e graduada em mm, que foi confeccionada pela Secção de Metrologia do Instituto de Pesquisas Tecnológicas. Os méniscos de mercúrio, refletidos pela escala, permitem evitar os erros de paralaxe, obtendo-se, então, com auxílio de uma lente uma precisão de medidas de 0,2 mm. O recipiente de volume variável, cuja finalidade é realizar o ajuste fino da contra-pressão, consta de um cilindro fechado, no interior do qual existe um êmbolo móvel. A fim de garantir a estanqueidade deste reservatório, sua parede interna foi retificada e o êmbolo apresenta um anel de teflon, o qual desliza nesta parede lubrificada com graxa de alto vácuo. O seccador S é um tubo de vidro contendo sílica gel e fechado nas suas extremidades com as torneiras 19 e 20.

A medida da pressão de vapor de hexafluoreto de urânia é realizada condensando-se inicialmente uma pequena quantidade do material no "trap" T₃, previamente posto em alto vácuo, e colocando, a seguir, este "trap" em contato com gelo, a fim de mantê-lo na temperatura de 0°C. Encontrando-se ambas as câmaras do manômetro de membrana capacitativa em alto vácuo, é ajustado o ponto zero do manômetro e fechada a torneira 14. Mantendo-se fechadas as válvulas 36, 38 e 39, por meio da abertura da válvula 21 o vapor do material presente no "trap" T₃ a 0°C é introduzido numa das câmaras do manômetro através da válvula 34. Depois de fechadas as torneiras 13, 17 e 18 e mantida aberta a torneira 15, é admitido ar na linha que contém o seccador S e que se encontrava em vácuo primário. Mediante a abertura lenta da torneira 17, o ar seco entra, então, na outra câmara do manômetro de membrana capacitativa. A contra-pressão, assim aplicada à membrana deste manômetro, é agora ajustada por meio de recipiente de volume variável V até o manômetro indicar o ponto zero. Esta contra-pressão que, nestas condições é igual à pressão de vapor do material presente na primeira câmara, é lida no manômetro de mercúrio M₃. Caso, no ajuste da contra-pressão, o ponto zero do manômetro de membrana capacitativa tenha sido ultrapassado, pode-se diminuir a contra-pressão por meio da abertura da torneira 18 e do bombeamento pela bomba rotativa. A comparação da pressão de vapor, assim medida a 0°C e estimada até 0,2 Torr, com o valor de 17,57 Torr, dado por OLIVER, MILLTON e GRISARD (55) permite fornecer informações acerca da pureza do material sob investigação.

O manômetro de membrana capacitativa ainda pode ser posto em comunicação com cada um dos recipientes que contêm hexafluoreto de urânia. Desta maneira é possível constatar a presença ou não de material nestes recipientes.

3. COMPONENTES E MONTAGEM DO SISTEMA DE TRANSFERÊNCIA E PURIFICAÇÃO DE UF₆.

Ao projetarmos o sistema de transferência e purificação, após a escolha do material de construção, foram levados em consideração os seguintes elementos: (1) tubulações, soldas e uniões metálicas, (2) recipientes e "traps" de metal, (3) válvulas metálicas e (4) peças de vidro "pyrex". A confecção ou a escolha destes elementos foi orientada sempre no sentido da estanqueidade a alto vácuo.

Os tubos de aço inoxidável utilizados são tubos sem costura com diâmetro externo de 12 mm e espessura de parede de 1 mm. As dimensões destes tubos são perfeitamente compatíveis com a capacidade do sistema de produção de alto vácuo empregado.

A soldagem destes tubos e das válvulas metálicas com as uniões desmontáveis, indicadas na Figura 5, foi realizada por meio da solda de arco em atmosfera inerte de argônio, conhecida por "argon-arc", que é a mais apropriada para sistemas de alto vácuo confeccionados de aço inoxidável. Os trabalhos de solda foram efetuados com a máquina de soldar adquirida da firma S.A. White Martins (São Paulo). Após a realização de um estudo preliminar com a finalidade de determinar as condições de operação mais adequadas à obtenção de soldas estanques, de diversos tipos, com tubos de aço inoxidável de diversos diâmetros, foi possível estabelecer com esta máquina uma técnica de soldagem, sem adição de materiais, que forneceu soldas perfeitamente estanques a alto vácuo e conduziu a um número mínimo de soldas defeituosas na construção do sistema de transferência e purificação.

Quanto às uniões desmontáveis, estanques a alto vácuo, o hexafluoreto de urânio não permite o emprego das uniões usuais de alto vácuo, formadas de um anel toroidal de borracha apertado entre dois flanges, pois a borracha não resiste à ação deste composto. Existem então duas alternativas, a saber, as uniões inteiramente metálicas ou as uniões metálicas providas de um anel de teflon. No sistema de transferência e purificação construído, foram utilizados os dois tipos de união, dando-se porém preferência às uniões inteiramente metálicas.

Na escolha das uniões inteiramente metálicas foram adotadas os seguintes critérios de seleção: (1) resistência à ação corrosiva do UF₆, (2) dessorção pequena do material, (3) usinagem fácil da união, (4) geometria simples da união, de modo a facilitar a montagem da instalação, (5) facilidade de padronização e (6) baixo custo da união. Não tendo encontrada no mercado uma união de aço inoxidável estanque a alto vácuo, realizamos uma pesquisa bibliográfica bastante extensa sobre o assunto, nos moldes da mencionada por HENRY e BLAIVE (60), e confeccionamos os tipos descritos por VAN HEERDEN (61), por LANGE e ALPERT (62) e por HINTEN BERGER (63). Todos estes tipos, ensaiados na linha de alto vácuo existente na Secção de Separação de Isótopos, forneceram a estanqueidade desejada. Foi decidido então utilizar, no sistema de transferência e purificação, a união representada esquematicamente na Figura 6, que se baseia no tipo desenvolvido por VAN HEERDEN e que melhor satisfaz aos critérios de escolha adotados.

A união, representada na Figura 6, é formada de quatro peças, das quais duas, designadas por A e B, são de aço inoxidável 18/8. Estas peças, que são idênticas e de fácil usinagem, apresentam duas cunhas

iguais com um ângulo de aproximadamente 30°. Entre as duas peças se encontra o anel de cobre recosido E. Este anel é firmemente apertado pelas outras duas peças rosqueadas de latão sextavado C e D. A união poderia ter sido confeccionada com apenas três peças de aço inoxidável, das quais duas seriam rosqueadas e uma simples. Todavia, neste caso, o custo seria mais elevado e a usinagem, mais demorada. O recosimento do anel de cobre é realizado aquecendo-o ao rubro e mergulhando-o a seguir em álcool metílico. Desta maneira ocorre não só o amolecimento do anel como também a completa desoxidação de sua superfície.

Segundo a experiência de LYUBIMOV et al. (64), o uso de peças rosqueadas para o aperto da união é recomendado para tubos de diâmetros externos compreendidos entre 10 e 20 mm; para diâmetros maiores, é necessário o emprego de flanges. No presente caso não houve portanto, inconveniente em utilizar peças rosqueadas, as quais, em relação aos flanges, apresentam a vantagem de ocupar um espaço menor e de permitir uma montagem mais fácil da união. A única desvantagem apresentada pela união da Figura 6 é o cuidado que deve ser tomado no sentido de não danificar as cunhas, pois quando isto ocorre a união deixa de ser estanque a alto vácuo. Todavia a experiência nos mostrou que uniões assim danificadas podem ser facilmente recuperadas, limando e, a seguir, lixando as cunhas de modo a reconstituir a forma original.

Todas as uniões utilizadas no sistema de transferência e purificação foram confeccionadas na Oficina Mecânica da Secção de Separação de Isótopo, a partir de um cilindro de aço inoxidável 18/8 de 1" de diâmetro, fundido e forjado pela Secção de Aços Especiais do Instituto de Pesquisas Tecnológicas. As uniões múltiplas, indicadas na Figura 5, são formadas de um cubo perfurado de aço inoxidável (25 mm de lado) cujas faces apresentam três ou, no máximo, quatro das uniões desmontáveis descritas. Para a confecção destas uniões múltiplas, foi utilizada uma barra forjada de aço inoxidável 18/8, de secção quadrada, com 1" de lado, a qual foi também fornecida pela Secção de Aços Especiais. A usinagem desta barra permitia a obtenção do cubo com duas saídas laterais, as quais eram soldadas as uniões desmontáveis, segundo a técnica acima mencionada. As outras saídas da união múltipla eram obtidas através da solda direta das uniões nas faces do cubo.

Além destas uniões inteiramente metálicas, o sistema de transferência e purificação apresenta quatro uniões com gaxeta de teflon, a saber, a união entre o "pigtail" e a válvula 42, a união entre o manômetro M e a válvula 41 e as duas uniões que ligam o manômetro de membrana capacitiva à instalação. Nestas uniões tomou-se sempre o cuidado de acomodar a gaxeta de teflon, formada de um anel de secção quadrada, na ranhura circular presente numa das peças da união. Na Figura 7 está representada a união que existe entre o "pigtail" e a válvula 42. Nesta união, A e B são as peças que se encontram soldadas a estes elementos da instalação, enquanto que o anel E é a gaxeta de teflon introduzida na ranhura da peça B. A presença desta ranhura é necessária porque no aperto da gaxeta com a outra peça da união, que pode apresentar uma superfície plana ou a saliência circular mostrada na Figura 7, ocorre sempre uma pequena de formação plástica do teflon.

Os recipientes e "traps" do sistema, que são apresentados na Figura 5, foram construídos de tubos de aço inoxidável 18/8, em cujas extremidades foram soldados discos do mesmo material. Os tubos cilíndricos utilizados na confecção dos "traps" T₁ e T₂ apresentam 260 mm de

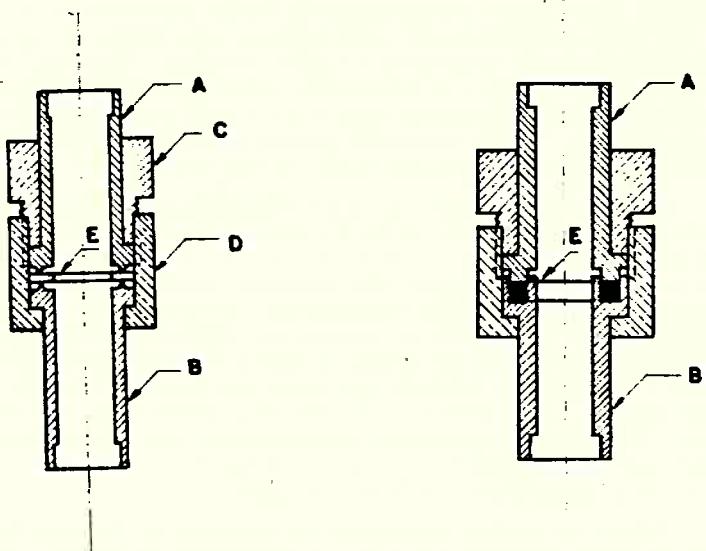


Figura 6 - União metálica com anel de cobre

Figura 7 - União metálica com gaxeta de teflon

comprimento, 62 mm de diâmetro externo e 2 mm de espessura de parede. Na tampa superior destes cilindros foi soldado o tubo interno do "trap", enquanto que na parte superior da parede do cilindro foi soldado o tubo que constitui a saída da lateral do "trap". Na extremidade superior do tubo interno destes "traps" e na saída lateral se encontram soldadas as válvulas que fazem parte dos "traps". O "trap" T₃ é um recipiente simples, formado da válvula 22 e de um tubo de 200 mm de comprimento e 20 mm de diâmetro interno. A parede externa deste tubo foi usinada até a espessura de parede de 0,5 mm, a fim de favorecer o estabelecimento do equilíbrio térmico, quando o "trap" é posto em contato com gelo durante a medida da pressão de vapor.

Foram confeccionados dois tipos de recipientes R₁, a saber, um recipiente pequeno de 200 mm de comprimento e de 50 mm de diâmetro e o recipiente grande de 400 mm de comprimento e 100 mm de diâmetro. No primeiro destes recipientes foi coletado o hexafluoreto de urânio puro utilizado nos trabalhos de espectrometria de massas, enquanto que o segundo recipiente destinava-se a armazenar o material puro que foi empregado nas experiências de separação de isótopos.

As válvulas metálicas são válvulas de aço inoxidável 18/8 Mo, estanques a alto vácuo, com fole metálico e assento tronco-cônico de aço inoxidável, fabricadas como "miniatura" pela firma francesa Techniques Nucléaires. As saídas laterais destas válvulas apresentam um diâmetro externo de 1/2" e foram utilizadas válvulas com saídas laterais retas e válvulas com saídas laterais em ângulo reto.

Todas as peças de vidro "pyrex", que fazem parte da instalação e são estanques a alto vácuo, foram confeccionadas pela Oficina de Vidro que existia na Secção de Separação de Isótopos.

O sistema de transferência e purificação foi montado numa es-

trutura de secção retangular de cantoneiras perfuradas, da firma Indusa (São Paulo) e apresenta 3 m de comprimento, 1,90 m de altura e 0,55 m de largura. A sustentação da tubulação e de outros elementos da instalação foi realizada por meio das mufas e garras, usualmente empregadas nos laboratórios químicos. As mufas se encontram presas a barras de ferro verticais e horizontais, de 1/2" de diâmetro, parafusadas nas cantoneiras perfuradas. A tubulação metálica se encontra diretamente ligada às mufas, enquanto que a sustentação da tubulação de vidro é feita com auxílio das garras. O nitrogênio líquido e a mistura gelo seco-metanol, que resfriam os "traps" são colocados em frascos Dewar, os quais repousam sobre telas de amianto e anéis presos com mufas às barras de ferro verticais.

A montagem do sistema foi iniciada com a instalação da aparelhagem de vidro, que compõe a secção de produção e medida do alto-vácuo. A seguir, foram instaladas as peças de aço inoxidável, que ainda pertencem a esta secção, e as diversas partes que constituem as secções de sublimação e de transferência. Após sua instalação, cada uma destas partes foi submetida a ensaios de estanqueidade por meio do próprio sistema de alto vácuo já instalado.

Todas as peças de aço inoxidável, depois de soldadas e antes de serem submetidas a este ensaio, foram cuidadosamente limpas nas suas partes internas. Esta limpeza foi realizada através das seguintes etapas: (1) desengraxe com tri-cloro-etileno, (2) desengraxe alcalino com água e sapóleo, (3) lavagem com água, (4) decapagem com uma solução ácida, (5) lavagem com água destilada e (6) secagem em estufa. A decapagem ácida foi efetuada na temperatura na de 50°C com uma solução de 10-20 vol. de ácido nítrico e 2-4 vol. de ácido fluorídrico. A limpeza prévia tem por finalidade evitar que as impurezas das superfícies de aço inoxidável determinem um bombeamento excessivamente prolongado para a obtenção do alto vácuo. Além disto estas impurezas, ao serem desorvidas das paredes durante o bombeamento, podem fornecer uma elevação de pressão no interior da peça sob investigação, que pode ser facilmente confundida, com a elevação de pressão proveniente de vazamentos reais.

Terminada a instalação das secções de sublimação e de transferência, foi realizada a montagem da aparelhagem de vidro que constitui a secção de medida da pressão de vapor. Completada a montagem de todo o sistema, este foi submetido a um ensaio geral de estanqueidade a alto vácuo, o qual forneceu resultados plenamente satisfatórios. A Figura 8 apresenta todo o sistema construído.

Todos os ensaios de estanqueidade realizados consistiram em colocar, inicialmente, a peça que estava sendo ensaiada em alto vácuo, isto é, em pressões inferiores a 10^{-5} Torr, por meio da ação da bomba de difusão. No instrumento de medida, da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), ligado à válvula Penning, este vácuo corresponde a leituras inferiores a 5 divisões de escala. Em seguida, interrompido o bombeamento, era observada a elevação de pressão, indicada por este instrumento, em função do tempo. A peça era então considerada estanque a alto vácuo e limpa, quando durante 5 minutos esta elevação de pressão não era maior do que 2×10^{-5} Torr, a qual corresponde uma variação de 3 divisões de escala, e quando a pressão se mantinha inalterada durante os 5 minutos seguintes. Em caso contrário, procurava-se descobrir o vazamento envolvendo, sucessivamente, as regiões suspeitas com algodão embebido em água ou com a massa de alto vácuo, da E. Leybold's Nachfolger. Estes procedimentos foram usados porque não dispunhamos de um

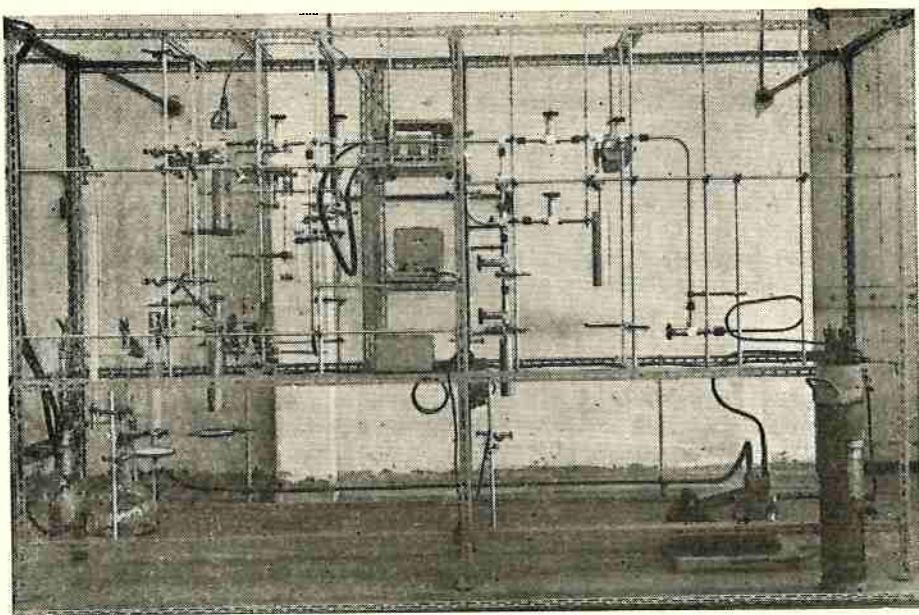


Figura 8 - Sistema de transferência e purificação de UF₆

verificador de vazamentos ("leak detector") para materiais metálicos. Em bora totalmente empírica, a experiência mostrou que o critério adotado para a estanqueidade a alto vácuo era plenamente satisfatório para os trabalhos com o hexafluoreto de urânio. Em vista dos resultados obtidos nes-tes ensaios pôde-se então concluir que o sistema de transferência e purifi-cação construído é estanque a alto vácuo, permitindo pois que no seu in-terior sejam obtidas e mantidas pressões inferiores a 10⁻⁵ Torr.

Finalmente, tendo em vista a toxicidade dos vapores de hexa-fluoreto de urânio, a fim de prevenir acidentes pessoais a instalação do sistema de transferência e purificação foi realizada numa sala bastante ampla com excelente ventilação natural.

4. TRANSFERÊNCIA E PURIFICAÇÕES DE HEXAFLUORETO DE URÂ-NIO REALIZADAS

A determinação da pureza do hexafluoreto de urânio de proce-dência norte-americana revelou que o material se encontrava ligeiramen-te decomposto, pois sua pressão de vapor a 0°C apresentava o valor de 21 Torr. Provavelmente esta decomposição resultou da entrada de umidade no cilindro de monel durante o período de armazenamento, de cerca de três anos. Nestas condições foi necessário purificar o material, além de transferí-lo do cilindro de monel a recipientes de menor capacidade.

Em vista dos trabalhos programados com o hexafluoreto de urâ-nio puro, foram realizadas duas purificações e transferências. Através da primeira destas operações tinha-se em vista obter cerca de 100 g de ma-terial puro, que seria utilizado nos trabalhos de espectrometria de mas-sa. A segunda purificação e transferência foi efetuada com a finalidade de se obter a quantidade de 2 a 3 kg de UF₆ puro, que seria destinada à ex-

periências de separação dos isótopos de urânia.

A primeira purificação e transferência foi conduzida em duas etapas. Na primeira destas etapas, a sublimação do material contido no cilindro de monel na temperatura ambiente foi realizada durante 6 horas, condensando-se o material, sob bombeamento da bomba de difusão, no "trap" T_2 (Figura 5) resfriado pela mistura gelo seco-metanol. Durante esta operação a pressão do vapor de sublimado na entrada do "trap" T_2 , lida no manômetro de membrana M_1 foi mantida em valores compreendidos entre 0,2 e 0,4 Torr por meio da manipulação da válvula 42. Após a sublimação, o material condensado no "trap" T_2 apresentou a pressão de vapor de 20,1 Torr a 0°C, enquanto que a do material contido no cilindro era de 17,9 Torr a 0°C. Por conseguinte, nesta primeira operação foi possível purificar o hexafluoreto de urânia presente no cilindro de monel, colelando-se as primeiras frações impuras no "trap" T_2 . O material do "trap" T_2 , mantido na temperatura ambiente, foi então transferido totalmente por sublimação direta ao recipiente R_1 , resfriado pela mistura gelo seco-metanol. As pesagens deste recipiente, realizadas antes e depois da transferência, mostraram que a quantidade de material sublimado e transferido nesta primeira operação foi igual a 84,4 g. Como o material transferido ao recipiente R_1 ainda não apresentava a pureza desejada, foi realizada sua resublimação, transferindo-o sob bombeamento ao "trap" T_2 , resfriado pela mistura gelo seco-metanol. Nesta operação a velocidade de sublimação foi ajustada pela válvula 40 do recipiente R_1 e a pressão do sublimado, lida agora no manômetro de membrana capacitiva MMC, foi mantida em valores compreendidos entre 0,4 e 1,0 Torr. Como a pressão de vapor do material condensado no "trap" T_2 ainda era igual a 18,6 Torr a 0°C, este material foi submetido a uma nova resublimação e condensado no recipiente R_1 , obtendo-se então a 0°C a pressão de vapor de 18,2 Torr. A seguir, uma terceira resublimação, na qual o material foi transferido do recipiente R_1 no "trap" T_2 , forneceu a mesma pressão de vapor para o material condensado no "trap" T_2 . Em vista desta concordância entre os valores de pressão de vapor medidos antes e depois desta última resublimação, o material coletado neste "trap" foi considerado puro. Deve-se notar que o valor de 18,2 Torr adotado aqui como sendo a pressão de vapor de hexafluoreto de urânia puro a 0°C, o qual concorda com o valor obtido para o material puro nas sublimações realizadas por GROTH e colaboradores (11), difere ligeiramente do valor determinado por OLIVER, MILTON e GRISARD (55). Esta discordância provém do fato de que em nossas determinações não é possível manter todo o sistema de medida de pressão de vapor na temperatura de 0°C. Finalmente, o hexafluoreto puro presente no "trap" T_2 foi transferido de novo ao recipiente R_1 . A pesagem deste recipiente acusou uma quantidade de material puro de 75,3 g, de modo que durante as operações de resublimação e de medida da pressão de vapor verificou-se uma perda de 9,1 g de material, que foi condensada no "trap" de proteção T_1 .

Na segunda etapa da primeira operação de purificação e transferência, o material foi sublimado no cilindro de monel, na temperatura ambiente, e condensado no "trap" T_2 , resfriado pela mistura gelo seco-metanol, durante 2 horas e com a pressão do vapor de sublimado de 0,3 Torr, lida no manômetro M . O hexafluoreto de urânia condensado no "trap" T_2 , tendo apresentado a pressão de vapor de 18,1 Torr a 0°C, foi considerado puro e, por isto, transferido diretamente ao recipiente R_1 . Nesta segunda etapa obteve-se 20,5 g de material puro. Nestas condições a quantidade total de hexafluoreto de urânia puro, obtida na primeira purificação e transferência, era igual a 95,8 g. As velocidades de sublimação uti-

lizadas nas duas etapas foram iguais a 14,1 g/h e 10,3 g/h, respectivamente.

Na segunda purificação e transferência foi adotado um procedimento diferente, uma vez que a maior parte das impurezas do material, armazenado no cilindro de mosel, já haviam sido removidas. Além disto, o emprego das pequenas velocidades de sublimação acima mencionadas de terminaria o dispêndio de um tempo excessivamente grande para a obtenção das quantidades de material puro, julgadas necessárias à realização das experiências de separação de isotópos. Por este motivo, nesta segunda purificação e transferência, o material presente no cilindro de mosel foi transferido diretamente ao reservatório grande R₁, resfriado por gelo seco-metanol, rejeitando-se inicialmente as primeiras frações de sublimado, ainda não suficientemente puras. A seguir, o material presente neste reservatório, na temperatura do gelo seco, foi purificado através do bombeamento com a bomba de difusão. Estas operações foram repetidas em três etapas sucessivas, realizadas em dias diferentes.

Na primeira etapa, mantido o cilindro de mosel na temperatura ambiente, o material sublimado neste cilindro foi inicialmente condensado no "trap" T₂, resfriado pela mistura gelo seco-metanol, até a pressão indicada pela válvula Penning apresentar valores entre 5×10^{-5} e 1×10^{-5} Torr. Então, fechadas as válvulas 33, 37 e 38, o material foi transferido diretamente do cilindro C ao reservatório R₁, resfriado pela mistura gelo seco-metanol, através das válvulas 35, 36, 39 e 40. A fim de se obter uma grande velocidade de sublimação, a pressão do vapor sublimado lida no manômetro de membrana M, foi mantida em 6 Torr através da manutenção da válvula 42. Desta maneira foi possível transferir 593,5 g de material ao reservatório R₁ em 2 h 30 min, que corresponde a uma velocidade de sublimação de 237,4 g/h. Como a pressão de vapor do material condensado em R₁ era igual a 20,3 Torr, este material foi purificado por sublimação em alto vácuo. Para isto, resfriado o reservatório R₁ pela mistura gelo seco-metanol, o material foi submetido a um bombeamento contínuo pela bomba de difusão até que a pressão indicada pela válvula Penning apresentou valores inferiores a 10^{-5} Torr. A medida da pressão de vapor a 0°C forneceu então o valor de 18,0 Torr e o material do reservatório foi considerado puro.

Nas duas etapas seguintes, foi empregado o mesmo método de operar variando-se apenas a pressão do sublimado, lido no manômetro M e o tempo de sublimação. Assim, na segunda etapa esta pressão foi mantida em 4 Torr e o tempo de sublimação foi igual a 3 horas, enquanto que a terceira etapa foi realizada com a pressão de 15 Torr durante 2 horas. A quantidade de material puro, obtido durante o tempo total de sublimação de 7 h 30 min, foi igual a 2419,3 g, o material condensado apresentando no final desta operação a pressão de vapor de 17,9 Torr a 0°C. Terminada esta transferência e purificação, o sistema foi deixado em alto vácuo e o reservatório R₁ foi retirado da instalação.



CAPÍTULO III

APARELHAGEM E MÉTODOS DE MEDIDA

Este capítulo visa descrever a centrífuga a gás utilizada no presente trabalho, o sistema construído com a finalidade de introduzir e refinar o hexafluoreto de urânio desta centrífuga e o espectrômetro de massas destinado à análise isotópica de urânio. Serão também descritas o método de medição da variação do vapor de hexafluoreto de urânio e o da medida da relação de abundância dos isotópos de urânio.

1. DESCRIÇÃO DA CENTRÍFUGA CONTRACORRENTE, MÓDULO ZG3

A centrífuga contracorrente, modelo ZG3, empregada na presente investigação, foi descrita em detalhes por GROTH e colaboradores (11, 12, 29) e num trabalho de nossa autoria (15). Por este motivo, abordaremos aqui apenas as características desta máquina, que julgamos essenciais à perfeita compreensão do texto, e as modificações introduzidas para a realização das experiências de centrifugação com o hexafluoreto de urânio.

A Figura 9 representa um corte vertical da centrífuga ZG3. Esta consiste, essencialmente, do rotor vertical óco 3, de diâmetro médio, alimentado pelo motor 2,6, presente na unidade superior 2. O gás de composição isotópica natural, ou gás de alimentação, é introduzido no interior do rotor através do tubo interno do eixo tubular superior, de dupla parede, preso ao motor. A contracorrente gaseosa é produzida no interior do rotor por convecção térmica mediante o aquecimento da tampa superior por meio de correntes de Foucault e o resfriamento simultâneo da tampa inferior por meio da circulação da água fria na serpentina que circunda esta tampa. Nestas condições a corrente ascendente circula ao longo da parede interna do rotor e fornece o gás empobrecido do isótopo leve ou desejado, isto é, o rejeito da separação, enquanto que a corrente descendente, que circula na região axial, é constituída pelo gás enriquecido do isótopo leve, ou seja, pelo produto da separação. O rejeito é retirado da centrífuga através do tubo externo do eixo superior de dupla parede, após escoar entre o disco circular 3.3. e a tampa superior do rotor. Ao mesmo tempo, a retirada do produto do interior da centrífuga é realizada através do eixo tubular inferior, de parede simples. A introdução de gás de alimentação e a extração do produto e do rejeito são efetuadas graças a ação de uma bomba de vácuo rotativa.

O rotor apresenta as seguintes dimensões internas: 66,5 cm de comprimento Z e 18,5 cm de diâmetro $2r_2$. A centrífuga utilizada, que designamos por ZG3-A, para distingui-la das outras existentes na Secção de Separação de Isótopos, gira em regime de plena carga com 30960 r.p.m., que corresponde a uma velocidade periférica ωr_2 de 300 m/s.

O movimento de rotação do rotor é, essencialmente, o de um cor-

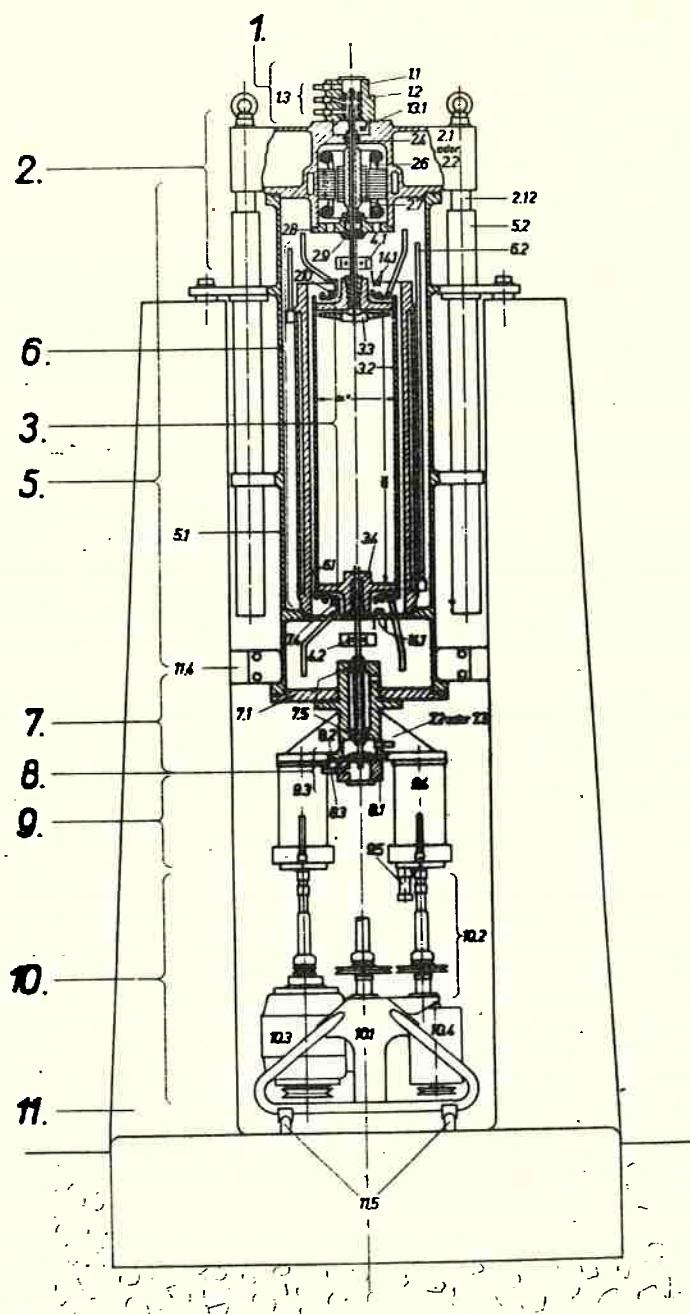


Figura 9 - Esquema da centrífuga, modelo ZG3

po rígido que gira livremente em torno de seu eixo longitudinal. Para isto os eixos tubulares que sustentam o rotor, graças a uma construção especial, apresentam uma elevada elasticidade. Desta maneira a transmissão de vibrações causadas por desbalanços inevitáveis do rotor, às secções dos eixos tubulares situadas nos mancais, é consideravelmente reduzida, evitando-se assim o desgaste dos mancais e uma vibração pronunciada dos eixos no interior dos anéis de vedação, presentes nos labirintos 1 e 8 da Figura 9. Todavia neste movimento do rotor como um girascópio, preso elásticamente, ocorre o movimento da precessão do eixo de rotação. Para diminuir esta precessão, foram introduzidos os mancais de amortecimento 4.1 e 4.2, originalmente propostos por BEAMS e convenientemente modificados por GROTH e colaboradores. A centragem dos eixos tubulares é efetuada por meio dos mancais de colar 2.4 e 7.5, constantemente lubrificados e resfriados por óleo, enquanto que o peso do rotor é suportado pelo mancal de pressão 2.9, no qual é injetado óleo sob a pressão de 10 a 12 atm.

As dimensões do rotor acima citadas são tais que as frequências próprias do rotor, em relação à oscilações de torção e de flexão, se encontram situadas acima da frequência de rotação em regime de plena carga. Nestas condições, durante seu acionamento até esta frequência de rotação, o rotor não atravessa nenhuma de suas frequências críticas, mantendo-se pois em funcionamento sub-crítico em todas as suas fases de operação.

A circulação do óleo necessário à alimentação de todos os mancais é promovida pelas bombas de engrenagem inferiores 9.3 e 9.4 e pela superior (não desenhada na Figura 9), as quais se encontram diretamente acopladas ao motor 10.3. O motor de corrente contínua 10.4 é posto automaticamente em funcionamento por uma bateria de acumuladores, no caso de falta de energia elétrica, mantendo então a circulação de óleo até que a centrífuga se encontre completamente em repouso.

O rotor gira no interior da camisa cilíndrica de proteção 6, de dupla parede, através da qual circula água a fim de manter constante a temperatura do rotor. A camisa de proteção se encontra rodeada pela camisa externa 5.1., no interior da qual é feito inicialmente vácuo e, a seguir, é mantida a circulação de hidrogênio sob pressão reduzida, a fim de facilitar as trocas de calor. A obtenção do vácuo e a circulação de hidrogênio são efetuadas por meio da ação de uma bomba de vácuo rotativa.

O labirinto de gás superior 1 contém dois anéis de vedação 1.2 de grafite sinterizada com cobre. O gás de alimentação é admitido na parte superior do labirinto por meio do primeiro dos tubos 1.3, enquanto que o gás de rejeito, saindo dos orifícios existentes no tubo externo de eixo tubular superior, é retirado deste labirinto através do segundo dos tubos 1.3. A finalidade do anel de vedação superior é, então, a de evitar a mistura entre os gases da alimentação e do rejeito. O anel de vedação inferior se destina a impedir a mistura do rejeito com os vapores de óleo provenientes do mancal do colar 2.4. O labirinto inferior 3 apresenta apenas um anel de vedação 8.2, que tem por finalidade evitar a mistura dos vapores de óleo, provenientes do mancal inferior 7.5, com o gás do produto, o qual é extraído deste labirinto por meio do tubo 8.3. A distância entre os anéis de vedação e os eixos tubulares é da ordem de alguns centésimos de mm. Em virtude do pequeno jogo apresentado pelos mancais de colar, esta distância é suficientemente grande para impedir o contato entre os anéis de vedação e os eixos durante o movimento de rotação do rotor. Por outro lado, a distância é suficientemente pequena para evitar a mistura dos gases e dos vapores de óleo.

Nos trabalhos de centrifugação com o hexafluoreto de urânia, o terceiro dos tubos 1, 3, do labirinto superior, e o tubo 7, 2, do labirinto inferior 8, foram postos em comunicação com uma bomba de vácuo rotativa, através de "traps" resfriados por nitrogênio líquido. Foi necessário tomar esta precaução a fim de reduzir ao mínimo a possibilidade de contaminação dos vapores de óleo, presentes nas câmaras acima e abaixo dos respectivos mancais de colar 2, 4 e 7, 5 com o vapor de hexafluoreto de urânia existente nos respectivos labirintos.

A água fria, necessária ao resfriamento da tampa inferior do rotor e do óleo que alimenta os mancais, provém de um reservatório de 900 litros de capacidade, no qual se encontra imersa uma serpentina refrigerada com auxílio de um compressor de "freon". A circulação da água de resfriamento é efetuada em circuito fechado por meio de uma bomba hidráulica. A temperatura da água de resfriamento na entrada da centrífuga foi ajustada a 8°C e manteve-se constante, dentro de $\pm 0,5^{\circ}\text{C}$, durante a operação da centrífuga.

O motor 2.6 acoplado ao rotor da centrífuga é um motor assíncrono com frequência máxima de 60000 r.p.m. e potência de 2,1 kW. Este motor é acionado por um gerador trifásico de frequências médias de 8 kVA, 220 V e 500 Hz, o qual, por sua vez, é posto em movimento, através de correias, por um motor trifásico, de velocidade variável, de 11,5 kW e 220 V. Na operação da centrífuga, a velocidade deste motor é lentamente aumentada através da diminuição da resistência de um reostato variável até obter-se a frequência máxima do gerador, quando o reostato se encontra em curto-círcuito. Esta frequência, a menos do escorregamento, é então a frequência do rotor da centrífuga em regime de plena carga.

A medida da frequência da centrífuga é realizada por meio de um anel imantado preso ao eixo superior do rotor, que gira no interior da pequena bobina concêntrica, indicada por 13.1 na Figura 9. A frequência da força eletromotriz induzida, que é a frequência do rotor, é então determinada por comparação com as frequências fornecidas de um oscilador de audio, mod. GM 2308 da firma Philips (Holanda), através da figura de Lissajous obtida num osciloscópio de raios catódicos, tipo 304-A da firma, Du Mont (E.U.A.).

O desbalanço do rotor, acompanhado da pequena precessão de seu eixo, pode ser observado continuamente durante o funcionamento da centrífuga num osciloscópio de raios catódicos, mod. GM 5659 da firma Philips (Holanda), graças à variação da indutância, provocada pelo desbalanço, nas bobinas fixas 14.1 (Figura 9) que se encontram instaladas ao redor das tampas do rotor e são alimentadas por um sinal de 50 kHz, fornecido por um oscilador eletrônico. Através de um circuito paralelo ligado a estas bobinas, o desbalanço também pode ser medido num instrumento situado no painel geral da centrífuga. Para realizar estas medidas de desbalanço, tanto o instrumento do painel como o osciloscópio são inicialmente calibrados por intermédio de um sistema externo formado por uma bobina análoga às bobinas 14.1 e, situada ao redor de um disco, de excentricidade conhecida, acionado por um motor.

As correntes de Foucoul, por meio das quais é realizado o aquecimento da tampa superior do rotor, são produzidas pela rotação do colar da tampa superior entre os ferros de um eletro-imã fixo (não apresentado na Figura 9). A corrente que atravessa o eletro-imã é fornecida por uma fonte de alimentação de corrente contínua. Por meio de um reostato e um amperômetro, existentes neste circuito elétrico, a corrente po-

de ser ajustada e lida, de modo a permitir o controle do aquecimento de
sejado na tampa superior.

A temperatura das tampas do rotor é medida por meio de dois termistores (não apresentados na Figura 9) ligados, através de uma chave, a uma ponte de Wheatstone, da firma Leeds e Northrup Co. (E.U.A.). Os termistores, ou resistores de coeficiente de temperatura negativo, estão situados na superfície de dois anéis de alumínio, fixos, que penetram nas ranhuras circulares existentes nas respectivas tampas, sem contudo tocá-las. Estes anéis, em virtude de sua proximidade com as tampas e devido à presença de hidrogênio, apresentam aproximadamente a temperatua das tampas, de modo que esta não se afasta muito da temperatura medida.

Da descrição apresentada segue-se que fazem parte da centrífuga os seguintes circuitos independentes: (1) o circuito de óleo (2) o circuito de vácuo da camisa externa e das câmaras adjacentes aos labirintos, (3) o circuito da água de resfriamento e (4) o circuito de acionamento do rotor. Todo o equipamento elétrico presente nestes circuitos é alimentado com a energia elétrica fornecida por um conjunto motor-gerador Diesel de 75 kVA, 220 V e 50 Hz, a fim de manter o funcionamento de toda a instalação de centrifugação independente das flutuações e das interrupções da energia elétrica proveniente da rede.

2. DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE INTRODUÇÃO E RETIRADA DE GÁS DA CENTRÍFUGA

O sistema de introdução e retirada de gás da centrífuga foi projetado com os seguintes objetivos: (1) introdução de vapor de hexafluoreto de urâno natural (gás de alimentação) na centrífuga e retirada da mesma das frações gasosas enriquecidas (produto) e empobrecidas (rejeito) do isótopo ^{235}U ; (2) medida das vazões do gás de alimentação, do produto e do rejeito; (3) transporte do gás de alimentação, do produto e do rejeito ao espectrômetro de massas para a realização da análise isotópica; (4) medida das pressões do gás na entrada e nas saídas da centrífuga e (5) armazenamento do produto e do rejeito da separação.

Para preencher estas finalidades o sistema deve ser formado de tubulações, uniões, válvulas, medidores de vazão, recipientes de resfriamento para a condensação do vapor de UF_6 , e de um medidor de pressão. Tendo em vista as propriedades agressivas do hexafluoreto de urâno foram escolhidos, como materiais de construção deste equipamento, o aço inoxidável 18/8, tipo 316, e o níquel, este último sendo usado na construção dos medidores de vazão. Além disto, considerando a facilidade de decomposição do UF_6 em presença de umidade, é necessário que o sistema seja estanque a alto vácuo, permitindo portanto a obtenção e a manutenção de pressões inferiores a 10^{-5} Torr. Nestas condições, além do equipamento mencionado e da bomba necessária à circulação do gás através da centrífuga e do sistema, este também deve apresentar uma secção de produção e medida de alto-vácuo. Em vista destas considerações, o sistema de introdução e retirada do hexafluoreto de urâno da centrífuga foi construído segundo o esquema apresentado na Figura 10, que será descrito a seguir.

Segundo o esquema da Figura 10, o hexafluoreto de urâno, de composição isotópica natural, presente no reservatório R_1 na temperatua de 0°C , a fim de manter uma pressão de vapor constante, é introduzi-

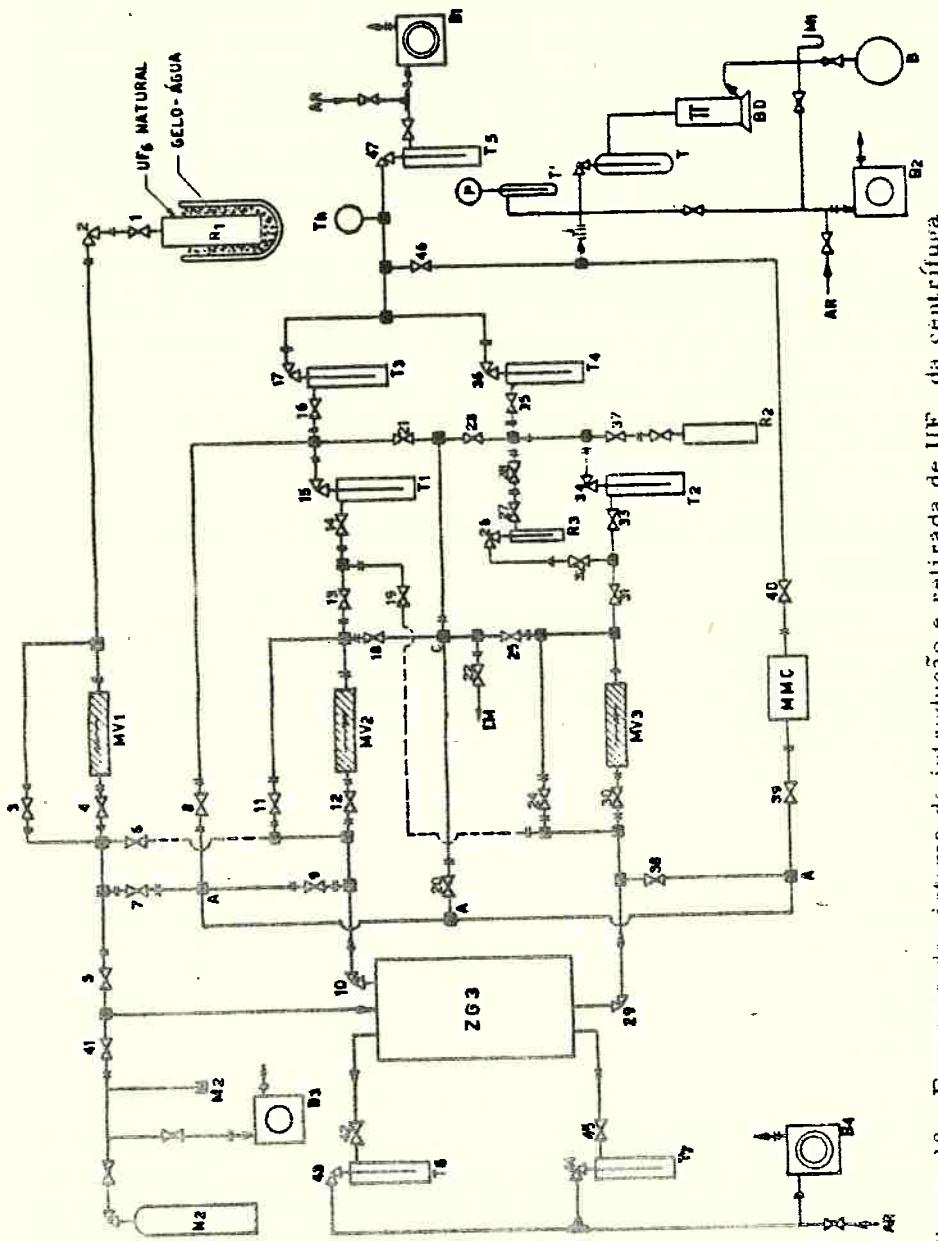


Figura 10 - Esquema do sistema de introdução e retirada de UF₆ da centrífuga

do em fase gasosa na centrífuga ZG3 através da tubulação que contém o medidor de vazão MV1. O reservatório R₁ é o recipiente grande, de aço inoxidável, mencionado no Capítulo II, que contém 2419,3 g do material purificado por sublimação. O rejeito da separação de isotópos realizada pela centrífuga é retirado do labirinto superior desta por meio da tubulação, que contém o medidor de vazão MV2, e condensa no "trap" de aço inoxidável T₁, resfriado pela mistura gelo seco-metanol. O produto da separação é extraído do labirinto inferior da centrífuga e atravessa a tubulação que contém o medidor de vazão MV3, condensando, a seguir, no "trap" de aço inoxidável T₂, também resfriado pela mistura gelo seco-metanol. A circulação do gás através do sistema e da centrífuga é determinada pela ação da bomba de vácuo rotativa B₁, tipo D6 da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), de 6 m³/h de velocidade de bombeamento. Esta bomba de dois estágios, que apresenta uma pressão parcial final de 2 x 10⁻⁴ Torr, também se destina a produzir o vácuo no sistema antes da admissão do gás.

As válvulas de aço inoxidável 1 e 2 permitem a entrada e o ajuste da vazão do gás que alimenta o sistema. Esta vazão é medida pelo medidor MV1, quando a válvula 3 se encontra fechada. As vazões do rejeito e do produto são reguladas por meio das válvulas 13 e 31 e medidas pelos medidores MV2 e MV3, respectivamente, encontrando-se, para isto, fechadas as válvulas 11 e 24. Os tubos em paralelo aos medidores de vazão destinam-se ao ajuste do ponto zero no aparelho para a medida da vazão, quando o gás não escoa através dos medidores. Neste caso as válvulas 4, 12 e 30 são fechadas e o gás pode circular através dos respectivos tubos em paralelo, sem a necessidade de se interromper sua passagem através do sistema. As válvulas 5, 10 e 29 permitem isolar a centrífuga de todo o sistema em questão.

A fim de realizar a calibração simultânea dos medidores de vazão, foi introduzida a tubulação (tracejada no esquema da Figura 10) que contém as válvulas 6 e 19. Mantendo-se fechadas as válvulas 5, 10 e 29, de modo a evitar-se a passagem do gás através da centrífuga, esta tubulação estabelece a ligação em série dos três medidores de vazão, mediante a abertura das válvulas 6 e 19. A mesma vazão de UF₆, que nestas condições atravessa os medidores quando a circulação do gás é realizada mediante a ação da bomba rotativa B₁, é então medida por meio da pesagem da quantidade do vapor, que condensa durante um intervalo de tempo conhecido no pequeno recipiente R₃, resfriado pela mistura gelo seco-metanol. Este recipiente, que possui as válvulas 26 e 27, se encontra ligado em paralelo ao "trap" T₂ por meio das válvulas 32 e 28, de modo que, uma vez realizada a calibração dos medidores de vazão, a circulação do gás é sempre efetuada através do "trap" T₂ e as válvulas 6 e 19 são sempre mantidas fechadas.

O transporte do gás de alimentação, do produto e do rejeito ao espectrômetro de massas é efetuado através de uma tubulação única, indicada por EM no esquema da Figura 10, após a abertura da válvula 22. A tubulação, que contém as válvulas 7 e 20 e as uniões A e C, conduz então o hexafluoreto de urânio natural ao espectrômetro, quando estas duas válvulas são abertas e as válvulas 8, 9, 21, 23, 18 e 25 permanecem fechadas. Após a realização da análise isotópica, fechada a válvula 7 e aberta a válvula 21, o gás residual presente na tubulação é coletado sob bombeamento no "trap" T₃, resfriado com nitrogênio líquido. O transporte do rejeito e do produto é realizado de maneira análoga mediante a manipulação das válvulas 18 e 25, respectivamente. O gás residual, que permanece nas

tubulações após a realização da análise isotópica, é condensado no "trap" T₃, quando se trata do rejeito, enquanto que no caso do produto este gás é coletado no "trap" T₄, resfriado com nitrogênio líquido, mediante a abertura da válvula 23.

A pressão do gás, na entrada e nas saídas da centrífuga, é medida por meio do manômetro de membrana capacitiva MMC, descrito no Capítulo II, após a abertura da válvula 39. O compartimento deste manômetro que não entra em contato com o hexafluoreto, é mantido sempre em alto vácuo mediante a manipulação da válvula 40 ligada diretamente a linha de alto vácuo, que contém a bomba de difusão BD. A fim de ajustar o ponto zero deste instrumento, o outro compartimento é posto em alto vácuo pela mesma bomba de difusão através da tubulação que contém a válvula 8 e as uniões A. Ajustado o ponto zero e mantida fechada a válvula 8, a medida da pressão na entrada e nas saídas da centrífuga pode ser realizada sucessivamente após abertura das respectivas válvulas 7, 9 e 38. Após a execução de cada uma destas medidas, o gás contido no manômetro é conduzido aos "traps" T₃ ou T₄ mediante a operação da válvula 8 ou das válvulas 20 e 23.

Durante a operação, os "traps" T₁ e T₂, resfriados pela mistura gêlo seco-metanol, destinam-se a armazenar o rejeito e o produto respectivamente. Os "traps" T₃ e T₄, resfriados com nitrogênio líquido, além das finalidades já mencionadas, têm por objeto coletar pequenas quantidades de UF₆ não condensados nos "traps" anteriores e eventuais produtos de decomposição deste material. Estes "traps", portanto, constituem uma medida de segurança, no sentido de evitar o contato de material corrosivo com a bomba de vácuo rotativa B₁ ou com a bomba de difusão BD. As válvulas 14, 15, 16, 17 e 33, 34, 35 e 36 destinam-se à abertura e ao fechamento dos "traps" T₁, T₂, T₃, T₄.

Terminada a operação, o armazenamento do hexafluoreto de urânia enriquecido é feito no reservatório R₂, resfriado pela mistura gêlo seco-metanol, por condensação do material sublimado no "trap" T₂. O gás é transportado nesta operação através da válvula 37. Por meio de um procedimento análogo é também possível a transferência do material empobrecido do "trap" T₁ a um recipiente análogo a R₂.

A bomba de vácuo rotativa B₁, que promove a circulação do gás através do sistema, encontra-se ligada ao "trap" de aço inoxidável T₅, resfriado com nitrogênio líquido. A finalidade deste "trap" é a de condensar vapores que eventualmente não condensaram nos "traps" T₃ e T₄, constituinte assim uma medida de segurança adicional para a operação da bomba rotativa. Na linha de vácuo primário, ligada à válvula 47 do "trap" T₅, encontra-se o vacuômetro Th, tipo par termoelectrônico "Thermotron" da firma E. Leybold's Nachfolger, destinado a medir o vácuo durante a operação do sistema.

O alto vácuo, necessário não sómente à medida da pressão pelo manômetro de membrana capacitiva, como também à verificação da estanqueidade do sistema antes de sua operação, é produzida pela bomba de difusão de mercúrio BD, modelo Hg 12 da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), presente num sistema convencional de alto vácuo. Este sistema, que faz parte da cascata de separação de isótopos descrita por JORDAN (15), se compõe de tubulações de vidro com torneiras de vidro de alto vácuo, do "trap" T de vidro para condensar os vapores de mercúrio da bomba de difusão, do manômetro de mercúrio M₁, do balão de vidro B, da válvula Penning P destinada à medida do alto vácuo, do "trap"

de vidro T' e da bomba de vácuo rotativa B₂, modelo S6 da firma E. Leybold's Nachfolger. Esta instalação de vidro se encontra ligada à tubulação de alto vácuo de aço inoxidável, que contém as válvulas 40 e 46, por meio de uma junta cônica J, munida de um fole de aço inoxidável. A abertura da válvula 46 permite estabelecer o alto vácuo em todo o sistema antes de sua operação. Durante a operação do sistema, a válvula 46 permanece fechada, o bombeamento do sistema sendo então realizado pela bomba de vácuo rotativa após a abertura da válvula 47.

Antes de iniciar as experiências de separação de isótopos é necessário fazer o vácuo no rotor da centrífuga. A fim de não realizar esta operação através do sistema de introdução e retirada de gás, este se encontra ligado, através da válvula 41, à bomba de vácuo rotativa B₃, modelo PH3 da firma Arthur Pfeiffer GmbH (República Federal Alemã), e ao manômetro de mercúrio M₂. Após o término das experiências de separação de isótopos, torna-se necessário introduzir nitrogênio seco em pressão elevada no rotor, para evitar a entrada de vapores de óleo. Por esta razão a válvula 41 está também ligada ao cilindro de nitrogênio seco N₂ da firma S.A. White Martino (São Paulo). Com esta providência, a introdução de nitrogênio pode ser realizada diretamente no rotor, sem a passagem através do sistema, quando as válvulas 5, 10 e 29 se encontram fechadas.

Finalmente, no esquema da Figura 10 está também representada a bomba de vácuo rotativa B₄, de dois estágios, modelo D6 da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã) a qual se encontra ligada às câmaras da centrífuga adjacentes aos labirintos superior e inferior por meio dos respectivos "traps" de aço inoxidável T₆ e T₇, resfriados por nitrogênio líquido. A finalidade deste sistema de vácuo, como já foi mencionado anteriormente, é a de reduzir ao mínimo a possibilidade de contato entre os vapores de óleo presente nestas câmaras e o vapor de hexafluoreto de urânia, que eventualmente passa através dos anéis de vedação da centrífuga. O material então condensado é mantido nos "traps" T₆ e T₇ mediante o fechamento das respectivas válvulas 42, 43, 44, 45.

A tubulação de aço inoxidável consta de tubos sem costura de 12 mm de diâmetro externo e 1,0 mm de espessura de parede, com exceção dos tubos de ligação do sistema com a centrífuga, o sistema de produção de alto vácuo e o espectrômetro de massas, os quais apresentam o diâmetro externo de 17 mm e a espessura de parede de 1,5 mm. A soldagem destes tubos e das válvulas com as uniões de aço inoxidável foi realizada através da solda "argon-arc", segundo a técnica mencionada no Capítulo II.

Os outros componentes de aço inoxidável, como as uniões desmontáveis, as válvulas de alto vácuo 1-47, os "traps" T₁ - T₇ e o reservatório R₂ são idênticos aos componentes utilizados na construção do sistema de transferência e purificação de hexafluoreto de urânia. A confecção das uniões múltiplas, todavia, difere da empregada neste sistema. Dada a necessidade de um número elevado destas uniões, cada uma delas foi usinada a partir de uma peça de aço inoxidável 18/8 formada de um "tee" com um corpo central cúbico de 25 mm de lado e três saídas cilíndricas laterais de 14 mm de diâmetro e 30 mm de comprimento. Estas peças foram fundidas sem porosidades pela Secção de Aços Especiais do Instituto de Pesquisas Tecnológicas. Quanto ao "trap" R₃ utilizado apenas na aferição dos medidores de vazão, este recipiente foi confeccionado de um tubo de aço inoxidável 18/8, de 25 mm de diâmetro externo e 200 mm de comprimento. A espessura da parede deste tubo foi reduzida a 0,6 mm, a fir-

de garantir um contato térmico eficiente com a mistura gêlo seco-metanol. Todas as peças de aço inoxidável, com exceção das válvulas, foram submetidas ao mesmo tratamento de limpeza descrito no Capítulo II.

O sistema de introdução e retirada de UF_6 da centrífuga foi montado numa estrutura de cantoneiras perfuradas da firma Indusa (São Paulo), que apresenta uma secção retangular, com 2 m de altura, 1,40 m de comprimento e 0,53 m de largura. A fim de não desmontar a cascata de separação de isótopos e de aproveitar a secção de produção e medida de alto vácuo nela existente, a estrutura foi montada em frente à centrífuga ZG3-A, do lado oposto ao da cascata. A fixação dos componentes do sistema nesta estrutura e a colocação dos frascos Dewar nos respectivos "traps" foram realizadas segundo a maneira descrita na instalação do sistema de transferência e purificação.

A montagem foi executada de modo que os medidores de vazão, o manômetro de membrana capacitiva e os instrumentos de medida de pressão e de vácuo se encontrassem situados na parte superior e os "traps" na parte inferior da estrutura de cantoneiras. Desta maneira foi possível situar a maior parte das válvulas numa altura facilmente acessível à operação do sistema e, ao mesmo tempo, facilitar a colocação dos frascos Dewar nos respectivos "traps". Na Figura 11 apresentamos uma vista geral da disposição dos diversos componentes no sistema instalado.

A montagem do sistema foi iniciada com a instalação do tubo de aço inoxidável que estabelece a ligação com o sistema de produção e medida de alto vácuo. Desta maneira foi possível a realização de ensaios de estanqueidade a alto vácuo à medida que as diferentes secções do sistema vinham sendo instaladas. Estes ensaios foram executados, segundo o procedimento descrito no Capítulo II, com a válvula Penning presente no sistema de produção e medida de alto vácuo. Terminada a montagem, o sistema foi submetido a um ensaio geral de estanqueidade a alto vácuo, no qual foram obtidos resultados plenamente satisfatórios, pois no interior de todo o sistema foi possível obter e manter pressões inferiores a 10^{-5} Torr.

3. MEDIDA DA VAZÃO DE HEXAFLUORETO DE URÂNIO

Os medidores de vazão presentes no sistema de introdução e retirada de hexafluoreto de urânio da centrífuga se baseiam no princípio do calorímetro de escoamento. A teoria destes medidores foi originalmente desenvolvida por BLACKETT et al. (65) com a finalidade de determinar calores específicos de gases. Os medidores foram utilizados mais tarde por BEAMS e colaboradores (5) para medir a vazão de vapor de hexafluoreto de urânio e, em época mais recente, por FRANCK e MEYER (66) na investigação da associação de ácido fluorídrico, em fase gasosa, através da determinação de seu calor específico. Medidores deste tipo foram também desenvolvidos por GROTH e colaboradores (12, 39) a fim de medir a vazão de argônio, xenônio e hexafluoreto de urânio.

Os medidores MV1, MV2 e MV3 apresentados na Figura 10, que já foram descritos resumidamente num trabalho de nossa autoria (15), seguem em linhas gerais o modelo usado por GROTH e colaboradores. O princípio básico deste tipo de medidores de vazão consiste no fornecimento de calor a uma região de um gás em escoamento e na medida da temperatura deste gás na entrada e saída do aquecedor. Este princípio pode ser posto em prática segundo o esquema apresentado na Figura 12, no qual o gás, cuja vazão se deseja medir, escoa através do tubo medidor T de pe-

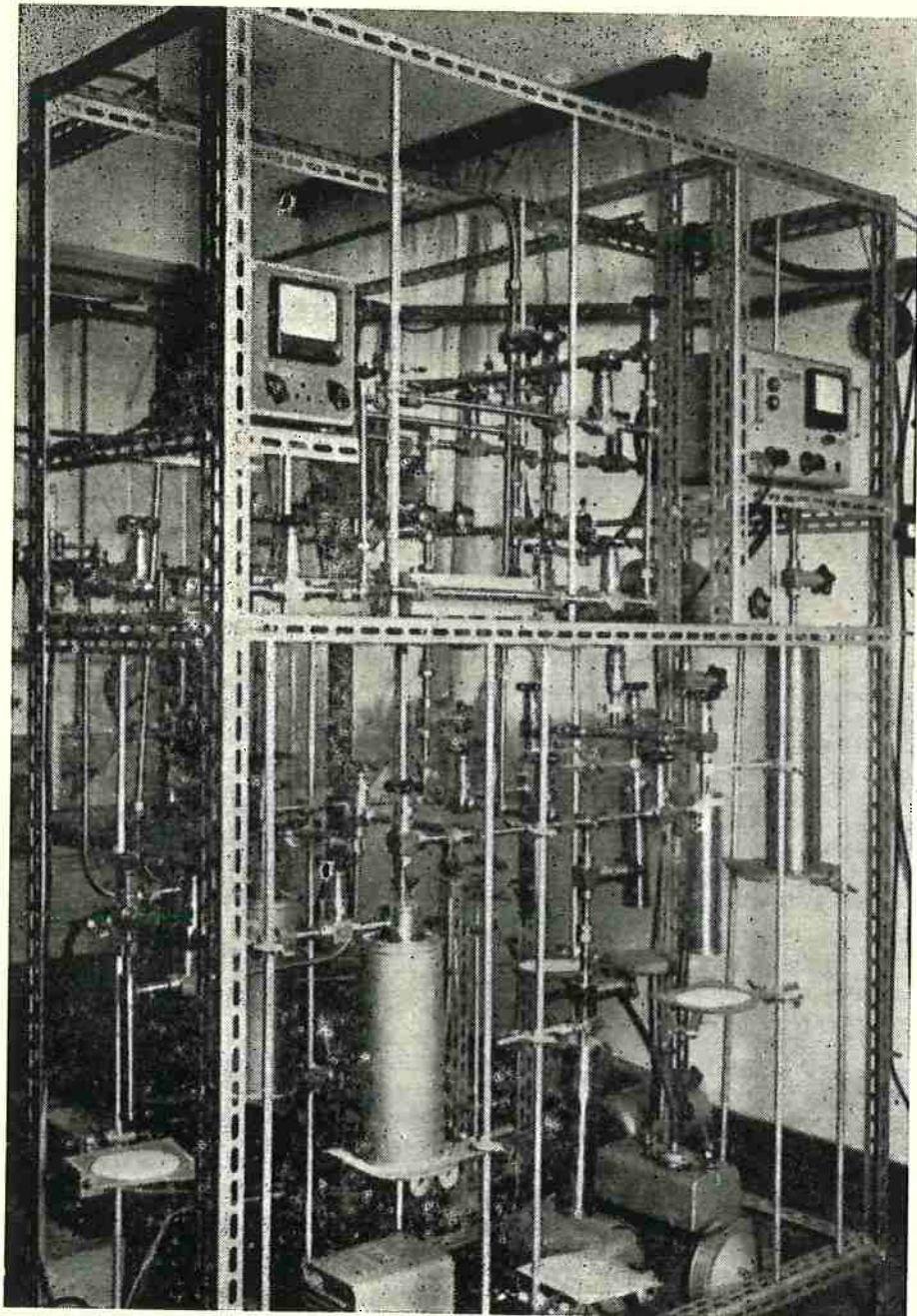


Figura 11 - Sistema de introdução e retirada de UF_6 da centrífuga

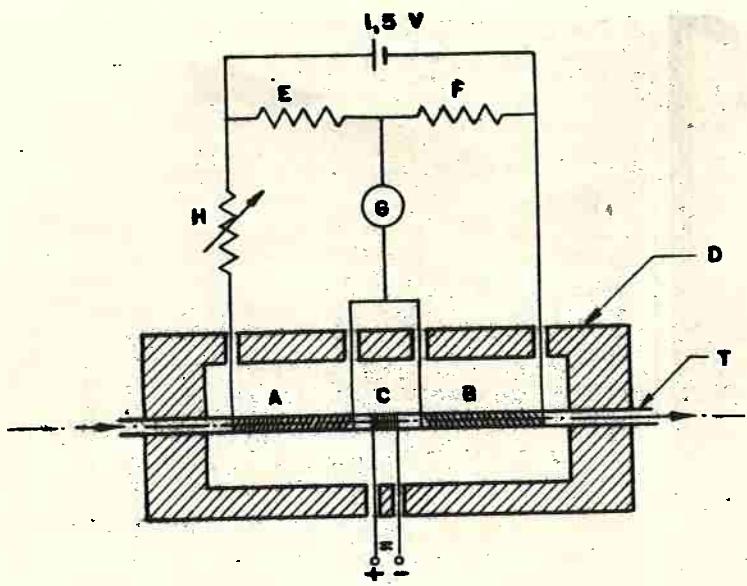


Figura 12 - Princípio do medidor de vazão

queno diâmetro e de parede muito fina. Sobre a superfície externa e na região central deste tubo se encontra enrolado o fio de manganina isolado C, o qual, percorrido por uma corrente elétrica funciona como aquecedor. As temperaturas do gás na entrada e saída deste aquecedor são medidas pelos termômetros de resistência A e B, formados de dois fios isolados de platina, que estão enrolados sobre o tubo T em posições simétricas em relação ao aquecedor. As extremidades do tubo T se encontram em contato com o bloco de alumínio D, o qual estabelece o curto-círcuito térmico entre estas extremidades e elimina, assim, a influência da temperatura ambiente.

Quando não há passagem de gás através do tubo medidor, o aquecedor de manganina fornece, em relação à região central, uma distribuição simétrica de temperaturas ao longo da superfície do tubo. Por outro lado, havendo escoamento gasoso através do tubo, o gás é aquecido e, a seguir, resfriado à medida que se aproxima e se afasta, respectivamente, da região central. Nestas condições, a distribuição simétrica em temperaturas é destruída, no sentido do escoamento, pela transmissão de calor, pois a temperatura de tubo na região do termômetro de resistência A é diminuída, devido ao aquecimento do gás, e a temperatura da outra região de tubo, na qual se encontra o termômetro B, é aumentada graças ao resfriamento de gás. Consequentemente, estabelece-se uma diferença entre as temperaturas destas duas regiões do tubo medidor durante o escoamento do gás. Denotando por L a vazão do gás que escoa através do tubo e por c_p , o calor específico do gás, de acordo com a teoria elaborada por BLACKETT et al. (65), esta diferença de temperatura Δt é dada por:

$$\Delta t = C_1 c_p L + C_3 (c_p L)^3 + \dots \quad (88)$$

onde C_1 é uma constante do aparelho e C_3 é uma constante que depende da

natureza do gás. Quando a vazão do gás é suficientemente pequena, o termo $C_3(c_p L)^3$ da equação (88) pode ser desprezado e, nestas condições, a diferença da temperatura se torna proporcional à vazão do gás.

A diferença de temperatura Δt determina uma diferença proporcional nas resistências dos fios A e B, quando os valores de Δt são pequenos. Esta diferença entre as duas resistências, $\Delta R = R_B - R_A$, é medida pelo circuito em ponte representado na Figura 12. Desde que as duas resistências da manganina E e F deste circuito sejam iguais, quando o balanço da ponte é realizado por meio do resistor variável H durante o escoamento do gás através do tubo medidor, resulta $\Delta R = R_B - R_A = R_H$. Nestas condições, o valor da resistência R_H do resistor variável fornece a diferença de resistências entre os termômetros A e B. Da proporcionalidade entre Δt e ΔR segue-se que a resistência R_H varia linearmente com a vazão L , para pequenas vazões gasosas. Calibrando-se, então, o medidor de vazão com vazões conhecidas, a reta de R_H em função de L , assim obtida, permite a determinação da vazão do gás por meio deste método diferencial de medida.

O medidor de vazão, construído segundo o esquema descrito, se encontra representado na Figura 13 e consta das seguintes peças: o bloco de alumínio A, o tubo medidor da vazão B, as peças de ligação C e D e o tubo de "by pass" E.

O bloco de alumínio A, destinado a manter na extremidade do tubo medidor na mesma temperatura, foi confeccionado de uma barra de alumínio de 250 mm de comprimento e de seção quadrada com $2\frac{1}{2}$ " de lado. Esta barra, depois de serrada eplainada longitudinalmente, forneceu as peças 1 e 2 no interior das quais foram frezadas as cavidades 3 e 4, destinadas a alojar o tubo medidor. Na montagem do medidor de vazão, estas duas peças são mantidas justapostas por meio de quatro parafusos 5.

O tubo medidor B é um tubo de níquel de 8 mm de diâmetro externo e de 0,1 mm de espessura de parede soldado às peças C e D por meio das quais o tubo é fixado no bloco de alumínio A. Na superfície externa do tubo de níquel, depois de tornada eletricamente isolante com verniz fenólico G, E. 9574 da firma General Electric S/A, foram realizados o enrolamento central do fio de manganina (0,3 mm de diâmetro) e o enrolamento lateral simétrico dos fios de platina (0,04 mm de diâmetro). Estes fios são mantidos presos ao tubo de níquel através de uma camada ao mesmo verniz isolante. O aquecedor central de manganina, assim confeccionado, apresenta uma resistência de cerca de 4 Ohm, enquanto que a resistência de cada um dos fios de platina, que constituem os termômetros de resistência, é de cerca de 600 Ohm. As extremidades livres dos fios de platina e do fio de manganina foram soldadas aos respectivos fios de cobre que atravessam os cilindros de "lucite" F.

As peças de ligação C e D, de latão, permitem a instalação do medidor de vazão no sistema de introdução e retirada do gás da centrífuga. Estas peças apresentam os flanges planos G, que originalmente foram ligados a flanges idênticos presentes na cascata de separação dos isotopos de argônio (15). Neste caso a ligação era efetuada por meio de um anel toroidal de borracha e de um anel de pressão, segundo o tipo de união conhecido por "flange pequena" NW 10 da firma E. Leybold's Nachfolger. A fim de utilizar os medidores para a medida da vazão UF₆, o anel de borracha foi substituído pela guarnição de teflon, introduzida nos respectivos flanges dos "tees" H de aço inoxidável, que pertendem ao sistema de introdução e retirada de gás da centrífuga. Para realizar o aperto da guarnição de teflon entre os flanges, foi mantido o uso dos anéis de pressão 6 da

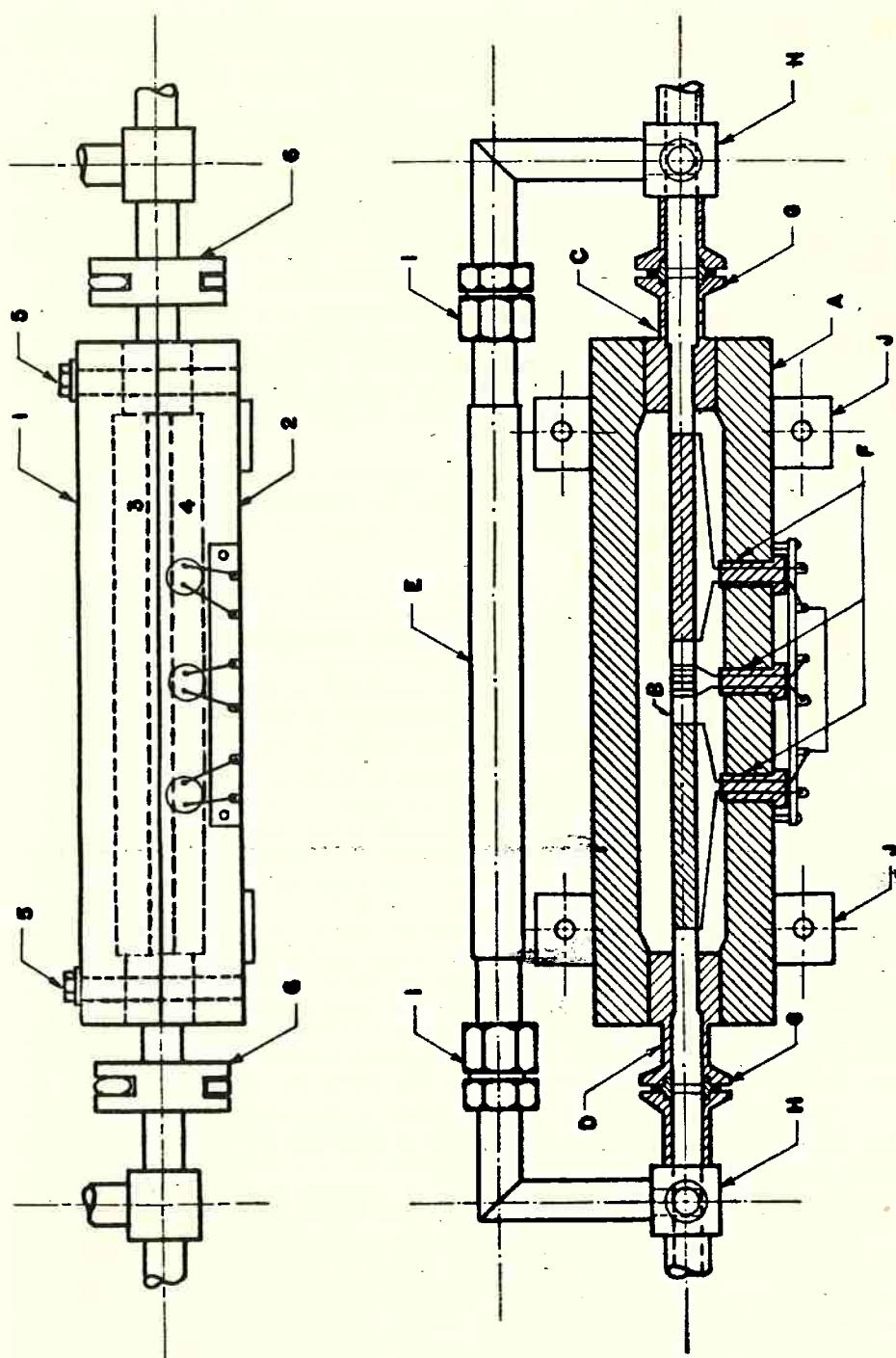


Figura 13 - Medidor de variação para UF₆ construído

firma E. Leybold's Nachfolger. O aperto assim obtido era suficiente para garantir a estanqueidade a alto vácuo destas uniões, embora esta não fosse tão perfeita como a obtida com a união inteiramente metálica representada na Figura 6.

A fim de manter a proporcionalidade entre a diferença de resistência e a vazão do gás para vazões gasosas elevadas foi introduzido no medidor de vazão, em paralelo com o tubo de níquel, o tubo de "by pass" E, que apresenta um diâmetro maior do que o de níquel. A ligação do tubo E é realizada por meio das uniões I, que pertencem ao tipo da representada na Figura 6. Quando as medidas são efetuadas com pequenas vazões, a passagem do gás através deste tubo é interrompida mediante a substituição do anel de cobre de uma destas uniões por um disco de cobre recozido, de dimensões idênticas.

Para a realização da medida diferencial de resistência, segundo o método acima descrito, foi construída uma ponte de Wheatstone, cujo resistor variável é um resistor "Helipot", da firma Beckman Instruments, Inc. (U.S.A.), de 25 Ohm, dividido em 10 partes iguais, cada uma apresentando 100 divisões. A medida da resistência R_H do circuito apresentado na Figura 12 é então feita em termos do número de divisões de escala lido neste resistor. A fim de não introduzir nesta medida o erro proveniente do aquecimento dos termômetros de resistência pela corrente que percorre a ponte, o circuito foi projetado de tal modo que através das resistências de platina passa sempre a mesma corrente. Para isto o balanço da ponte é realizado por meio de uma corrente não nula passando pelo galvanômetro e a tensão de alimentação é mantida sempre no mesmo valor. Nestas condições, a corrente lida no galvanômetro, quando não há escoamento gasoso e quando o resistor "Helipot" é colocado no seu valor zero, constitui o ponto zero da medida. Para realizar este ajuste do ponto zero, foi necessário introduzir em paralelo com os medidores de vazão MV1, MV2 e MV3, da Figura 10, os respectivos tubos que apresentam as válvulas 3, 11 e 24. O galvanômetro utilizado para detectar o ponto de equilíbrio da ponte é um galvanômetro "Multiflex" tipo MGF2 da firma Dr. Lange A.G. (República Federal Alemã), que apresenta uma sensibilidade de 4×10^{-8} A/mm. Para medir, com auxílio da mesma ponte, as vazões gasosas por meio dos três medidores instalados no sistema de introdução e retirada do gás de centrífuga, foram utilizadas chaves de faca de dupla entrada e três polos.

A corrente de aquecimento, contínua e constante, que alimenta as resistências de manganina dos três medidores de vazão, ligadas em série, é fornecida por uma fonte de alimentação. Esta fonte, também aqui construída, compõe-se de um retificador de selênio de onda completa, de um filtro de condensadores e de uma válvula reguladora de corrente, tipo 1908. A corrente de aquecimento, mantida por este circuito estabilizador em 780 mA, é medida por meio de um miliampêmetro de 1000 mA de fundo de escala.

Na calibração simultânea dos medidores de vazão, instalados no sistema de introdução e retirada do gás da centrífuga (Figura 10), adotamos o seguinte procedimento: inicialmente o circuito de medida da pressão, que contém o manômetro de membrana capacitiva MMC, e o circuito formado pelos medidores de vazão, pelo tubo de ligação que apresenta as válvulas 6 e 19, e pelos "traps" R_3 e T_2 , resfriados com a mistura gelo seco-metanol, foram postos em alto vácuo, mantendo-se fechadas as válvulas 5, 10, 29 e 14. A seguir, ajustados os pontos zeros no instrumento

da medida da vazão, após o fechamento da válvula 46 e a abertura das válvulas 1 e 2, foi iniciada a circulação do vapor de hexafluoreto de urânio a través dos medidores de vazão, por meio da ação da bomba rotativa B₁, mantendo-se o material armazenado no cilindro R₁ na temperatura de 0°C. Estando fechadas as válvulas 26, 27 e 28 e aberta a válvula 32, o vapor de hexafluoreto foi então condensado no "trap" T₂, a fim de permitir o ajuste da vazão. Este ajuste foi realizado mediante a manipulação das válvulas 2 e 31, até obter-se uma velocidade de condensação constante, indicada pelo valor lido no resistor "Helipot" do instrumento de medida da vazão para o medidor MV1 e pela pressão do gás medida na saída deste medidor com o manômetro de membrana capacitiva.

Terminado o ajuste da vazão, foi fechada a válvula 33 e ao mesmo tempo aberta a válvula 26, efetuando-se a partir deste instante, a condensação do hexafluoreto de urânio no "trap" de medida R₃. Durante esta operação, foram registradas sucessivamente as leituras fornecidas pelo resistor "Helipot" para cada um dos medidores de vazão, tendo sido necessário manipular ocasionalmente a válvula 31 a fim de manter a constância da velocidade de condensação. Decorrido um intervalo de tempo conhecido, a válvula 26 foi fechada e imediatamente foi aberta a válvula 33 à fim de condensar o vapor presente na linha após o fechamento das válvulas 1 e 2. A seguir, mantendo-se as válvulas 28 e 32 fechadas, o "trap" R₃ foi retirado da instalação e pesado até 0,01 g com uma balança de precisão, existente na Secção de Metrologia do Instituto de Pesquisas Tecnológicas, por meio do método da dupla pesagem. Com o auxílio da massa do "trap", obtida da mesma maneira antes da condensação, foi então possível calcular o aumento da massa deste "trap" para o intervalo de tempo durante o qual ocorre a condensação do material. Este aumento de massa, que corresponde à massa de UF₆ condensado, e o intervalo de tempo em questão fornecem, assim, a vazão do gás que atravessa os três medidores de vazão. A esta vazão correspondem então as leituras do resistor "Helipot" obtidas para cada um dos medidores.

De acordo com este procedimento foi realizada a calibração dos medidores MV1, MV2 e MV3, para pequenas e grandes vazões. Na primeira destas calibrações o UF₆ não passou através do tubo de "by pass" E, dà Figura 13. Os resultados obtidos nestas calibrações se encontram nas Tabelas I e II, nas quais são representados os valores do tempo de condensação t, da massa de UF₆ condensado m, da vazão L = m/t, das leituras do "Helipot" para os medidores MV1, MV2 e MV3 e da pressão p, medida na saída do medidor MV1. Cada um dos valores das leituras do "Helipot" constitui a média de pelo menos 6 leituras tomadas dentro dos intervalos de tempo apresentados.

Com auxílio dos valores apresentados nas Tabelas I e II foram construídas as curvas de calibração da leitura do "Helipot" em função da vazão, representadas nas Figuras 14 e 15 para vazões pequenas e vazões grandes, respectivamente. Observa-se destas figuras que a vazão de UF₆ é realmente proporcional à leitura do "Helipot", como requer a teoria a proximada de BRACKETT et al. (65), quando as vazões são inferiores a 0,15 g/min e a 0,40 g/min, no caso das "vazões pequenas" e "vazões grandes", respectivamente.

Os medidores de vazão construídos apresentam as seguintes vantagens: (1) resistência à corrosão pelo hexafluoreto de urânio, (2) estanqueidade a alto vácuo, (3) inexistência de uma constricção, que aumenta a resistência de escoamento do gás, (4) proporcionalidade entre a vazão do

TABELA I

CALIBRAÇÃO DOS MEDIDORES DE VAZÃO COM UF₆
VAZÕES PEQUENAS

<u>t</u> (min)	<u>m</u> (g)	<u>L = m/t</u> (g/min)	Leituras do "Helipot"			<u>P</u> (Torr)
			MV1	MV2	MV3	
50	1,59	0,0318	47,6	46,4	45,4	1,0
40	2,05	0,0513	78,7	75,4	74,9	2,1
25	2,57	0,103	149,6	145,4	143,0	1,0
10	1,46	0,146	200,8	194,6	191,8	1,5
10	1,97	0,197	256,8	248,6	244,7	1,5
12	2,85	0,238	289,2	279,4	274,8	2,0
10	2,73	0,273	305,1	295,1	290,1	2,0
10	3,90	0,390	358,5	347,4	339,8	2,0

TABELA II

CALIBRAÇÃO DOS MEDIDORES DE VAZÃO COM UF₆
VAZÕES GRANDES

<u>t</u> (min)	<u>m</u> (g)	<u>L = m/t</u> (g/min)	Leituras do "Helipot"			<u>P</u> (Torr)
			MV1	MV2	MV3	
15	1,69	0,113	49,3	47,7	46,3	2,0
10	2,29	0,229	106,5	102,2	101,3	2,0
10	3,39	0,339	158,4	151,8	151,0	2,5
10	4,40	0,440	197,5	189,3	189,1	2,5
10	5,90	0,590	252,3	242,9	242,0	2,5
10	7,23	0,723	288,9	278,6	278,3	3,1
10	9,79	0,979	343,1	333,1	330,0	4,0

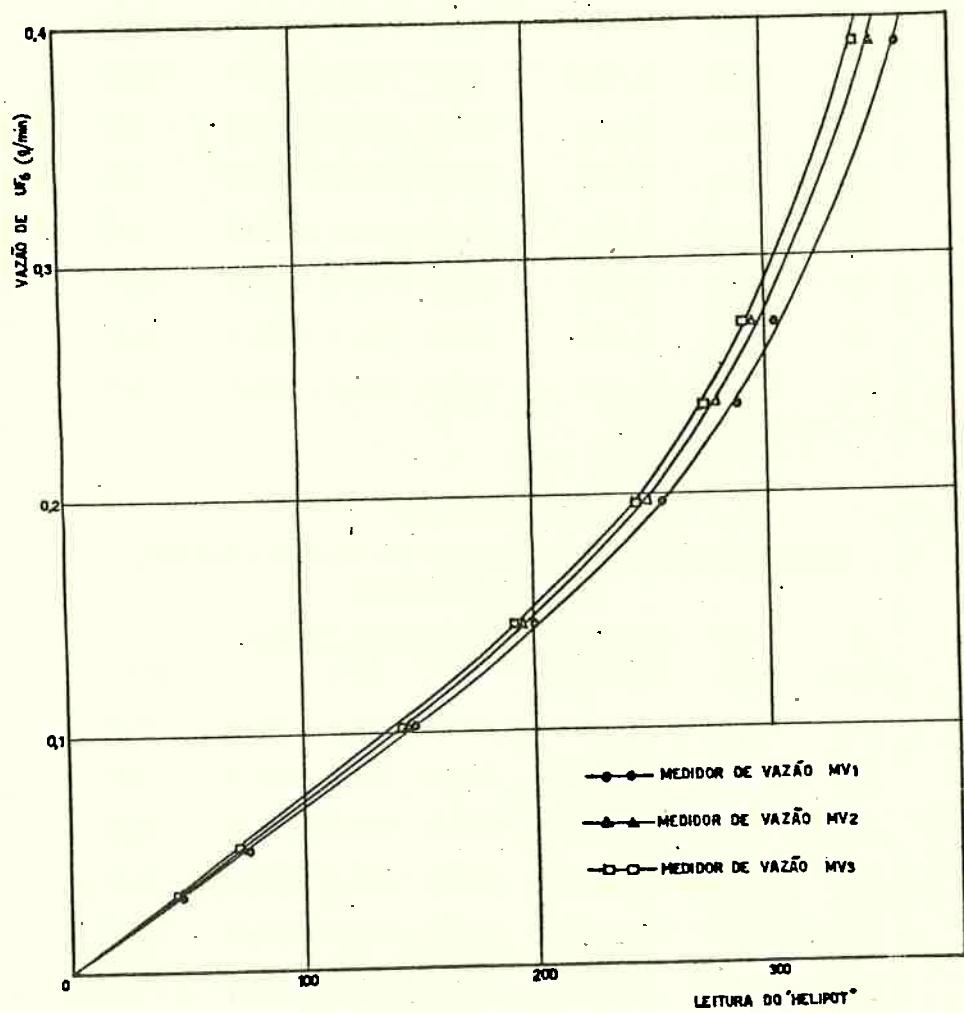


Figura 14 - Curva de calibração da vazão de UF_6 (vazões pequenas)

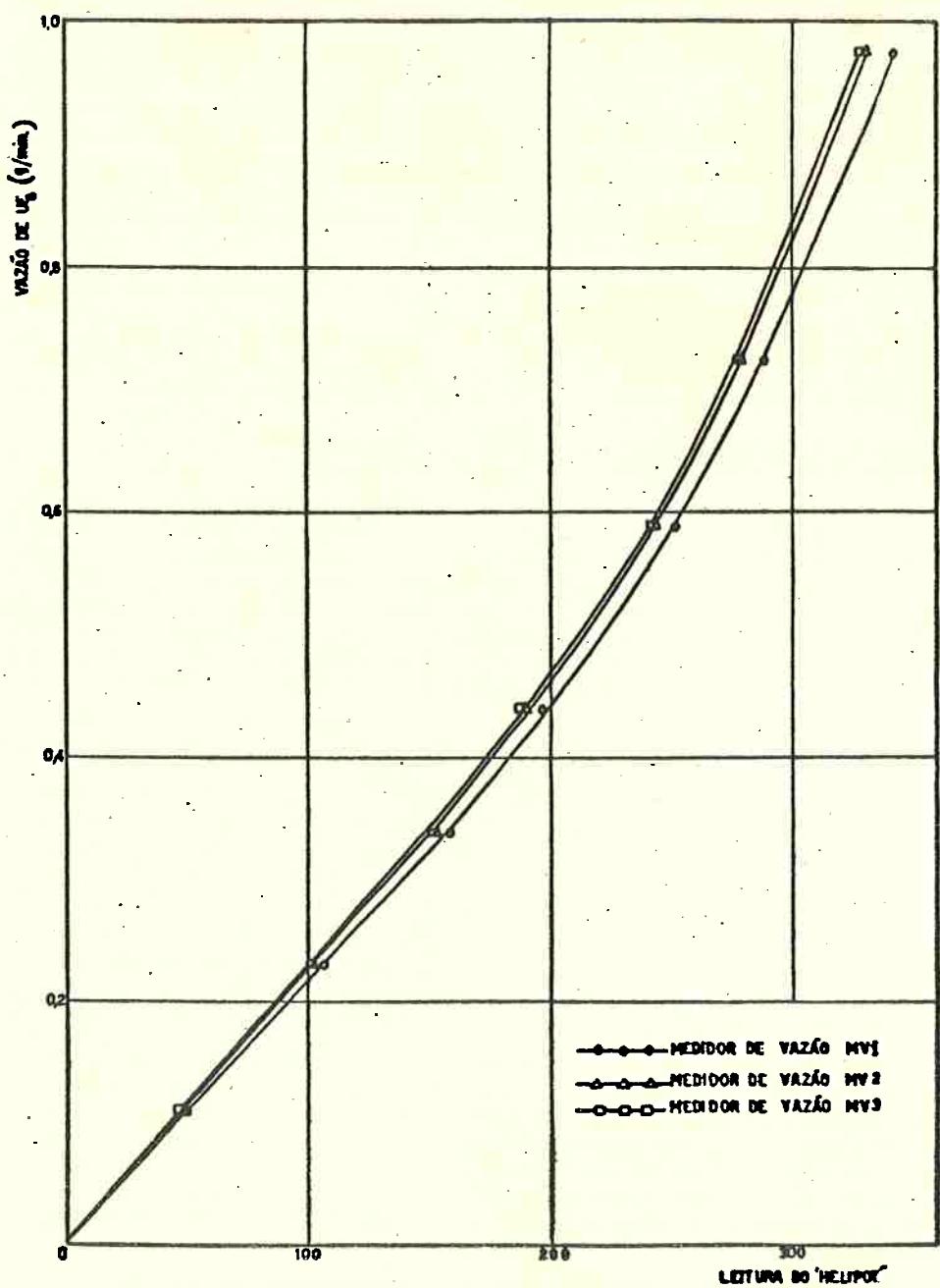


Figura 15 - Curva de calibração da vazão de UF₆ (vazões grandes)

gás e a grandeza medida, desde que se utilizam tubos de "by pass" de dimensões apropriadas, obtendo-se então um grande intervalo de medidas, (5) independência da pressão do gás na medida da vazão, (6) indicação direta e contínua e (7) precisão da medida de cerca de 1%. As dificuldades observadas na construção e operação destes medidores foram as resistências de contato e a variação do ponto zero. A primeira destas dificuldades foi eliminada com o uso de chaves de faca, enquanto que a segunda foi contornada mediante o ajuste frequente do ponto zero sem a passagem de gás através do medidor. A instabilidade do ponto zero provém do controle imperfeito da temperatura de gás e da falta de constância da corrente de aquecimento. A primeira destas fontes de erro pode ser eliminada por meio da colocação dos medidores num banho termostático, como fizeram BEAMS e colaboradores (5). Quanto à corrente de aquecimento, constatou-se que esta variava entre 780 e 800 mA, de acordo com as oscilações da tensão da rede. Esta variação pode ser eliminada mediante o emprego de um sistema mais complexo de estabilização da corrente elétrica.

4. DESCRIÇÃO DO ESPECTRÔMETRO DE MASSAS

O espectrômetro de massas utilizado na presente investigação é o espectrômetro de massas AN 220a, tipo Is/spezl, da firma Atlas-Werke AG (República Federal Alemã), de setor de campo magnético com ângulo de desvio de 60° e de focalização de direção, baseado no modelo originalmente desenvolvido por NIER (67). Este instrumento, construído com a finalidade de realizar a análise isotópica de urânio na forma de hexafluoreto, foi por nós descrito em detalhes num trabalho anterior (51), razão pela qual serão somente resumidos aqui seus característicos essenciais.

O espectrômetro apresenta um sistema de admissão de gás, inteiramente metálico e estanque a alto vácuo, formado de válvulas e tubulações de aço inoxidável. Este sistema é posto em alto vácuo por meio de uma bomba de difusão de mercúrio, modelo Hg 12 da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), ligada a um "trap", resfriado por nitrogênio líquido e confeccionado de aço inoxidável. O gás, cuja análise isotópica se deseja realizar, é introduzido neste sistema de admissão e transportado à fonte iônica do espectrômetro por meio de um tubo fino de aço inoxidável, depois de escoar através de uma membrana perfurada.

A fonte iônica, que pertence ao tipo descrito por NIER (67), realiza a ionização do gás por meio do bombardeio eletrônico. Os elétrons são emitidos de um filamento de tungstênio aquecido pela passagem de uma corrente alternativa estabilizada e sua energia, medida através de um voltômetro, pode ser ajustada entre 3 e 75 eV. A temperatura da fonte iônica pode ser variada entre 100 e 400°C e é medida por meio de um termômetro de resistência. Os íons gasosos, formados na câmara de ionização de fonte, são acelerados graças à aplicação de uma tensão de aceleração constante. O feixe iônico, assim produzido, é ajustado e focalizado por lentes iônicas presentes na fonte, de modo a tornar-se ligeiramente divergente após atravessar a fenda localizada na entrada do tubo de separação.

O tubo de separação é de cobre e apresenta um raio de curvatura médio de 20 cm. No interior deste tubo, o feixe iônico divergente sofre a ação de um setor de campo magnético de 60° , criado pelo eletrô-imã existente na parte curva do tubo. Mediante a variação da corrente elétrica que atravessa o eletrô-imã, o feixe iônico é então separado, de acordo

com a relação massa/carga de seus íons, em diversos feixes iônicos parciais que convergem sucessivamente num coletor de íons simples, após travessarem a fenda de saída do tubo de separação.

Os feixes iônicos parciais, cedendo suas cargas ao coletor, fornecem correntes compreendidas entre 10-10 e 10-15 A, as quais são pré-amplificadas num circuito eletrônico formado de um resistor, de elevada resistência, e de uma válvula eletrométrica. O sinal amplificado neste circuito é transportado a um circuito amplificador de corrente contínua com realimentação negativa. Este amplificador de potência fornece então um sinal de saída de baixa impedância, que é introduzido num registrador potenciométrico de pena "Speedomax" da firma Leeds e Northrup Co. (E.U.A.). Nestas condições, durante a variação da corrente do eletro-imã, os feixes iônicos, que atingem o coletor, são registrados como picos por meio desse instrumento e o conjunto de picos obtidos forma o espectro de massas do gás em questão.

A identificação da relação massa/carga dos picos registrados é realizada através da corrente do eletro-imã, indicada num instrumento graduado em divisões arbitrárias. A escala desse instrumento é calibrada em termos de números de massa por meio do registro do espectro de massas de íons de cargas e massas conhecidas, como, por exemplo, os dos isótopos do vapor de mercúrio mono-ionizado, que normalmente existe na fonte iônica, quando o alto vácuo desta é produzido por uma bomba de difusão de mercúrio.

A relação de abundância dos isótopos presentes no gás sob investigação é determinada através da medida das alturas dos picos registradas para os íons desses isótopos que apresentam a mesma carga, pois estas alturas medem as intensidades das respectivas correntes iônicas colhidas, as quais, por sua vez, são proporcionais às abundâncias relativas dos íons em questão presentes na fonte iônica. A fim de que a medida das alturas possa ser realizada com precisão para as mais diversas relações de abundâncias, o registrador vem equipado de uma chave manual, que permite variar a sensibilidade de registro numa relação de 1:1000.

A variação automática da corrente do eletro-imã é produzida por um circuito eletrônico que constitui o regulador da corrente do eletro-imã. Graças a este regulador, a varredura do espectro pode ser efetuada com velocidades diferentes e seu sentido pode ser invertido. Além disto, por meio de um ajuste manual, o regulador permite também manter a corrente do eletro-imã num valor fixo. Desta maneira o registro de um determinado pico pode ser mantido sem alteração ou, então, a varredura automática pode ser iniciada a partir das proximidades desse pico.

O alto vácuo da fonte iônica e do tubo de separação é produzido por uma bomba de difusão de mercúrio "Speedivac" da firma Edwards High-Vacuum Ltd. (Inglaterra), de três estágios e com velocidade de bombeamento de 70-80 l/seg. Esta bomba se encontra ligada, de um lado, a um "trap" de aço inoxidável, resfriado por nitrogênio líquido, o qual é posto em comunicação direta com a fonte iônica. De outro lado, a bomba está ligada a uma outra bomba de difusão de mercúrio, modelo Hg 3, da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã). O alto vácuo, normalmente obtido depois de um a dois dias de bombeamento contínuo, é de 10^{-7} Torr e sua medida é efetuada por meio de uma válvula Penning, da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), ligada a fonte iônica. Quando há necessidade, a obtenção do alto vácuo pode vir acompanhada de aquecimento da fonte iônica e do tubo de separação com auxílio

de aquecedores externos instalados nestas unidades do instrumento.

O vácuo primário, necessário ao funcionamento das bombas de difusão do sistema de admissão e da fonte iônica, é produzido por uma única bomba de vácuo rotativa, modelo PH3, da firma Arthur Pfeiffer GmbH. (República Federal Alemã), protegida por um "trap" de aço inoxidável, resfriado por nitrogênio líquido. Esta bomba se comunica com balões de aço inoxidável de 6 litros de capacidade, que se encontram também ligados às bombas de difusão. Estes balões, depois de postos em vácuo, permitem o funcionamento contínuo das bombas de difusão por mais de 12 horas sem a necessidade de acionar a bomba de vácuo rotativa.

A Figura 16 apresenta uma vista geral do espeçtrômetro formado de duas unidades separadas, a saber, a unidade de análise e a unidade de registro do espectro de massas.

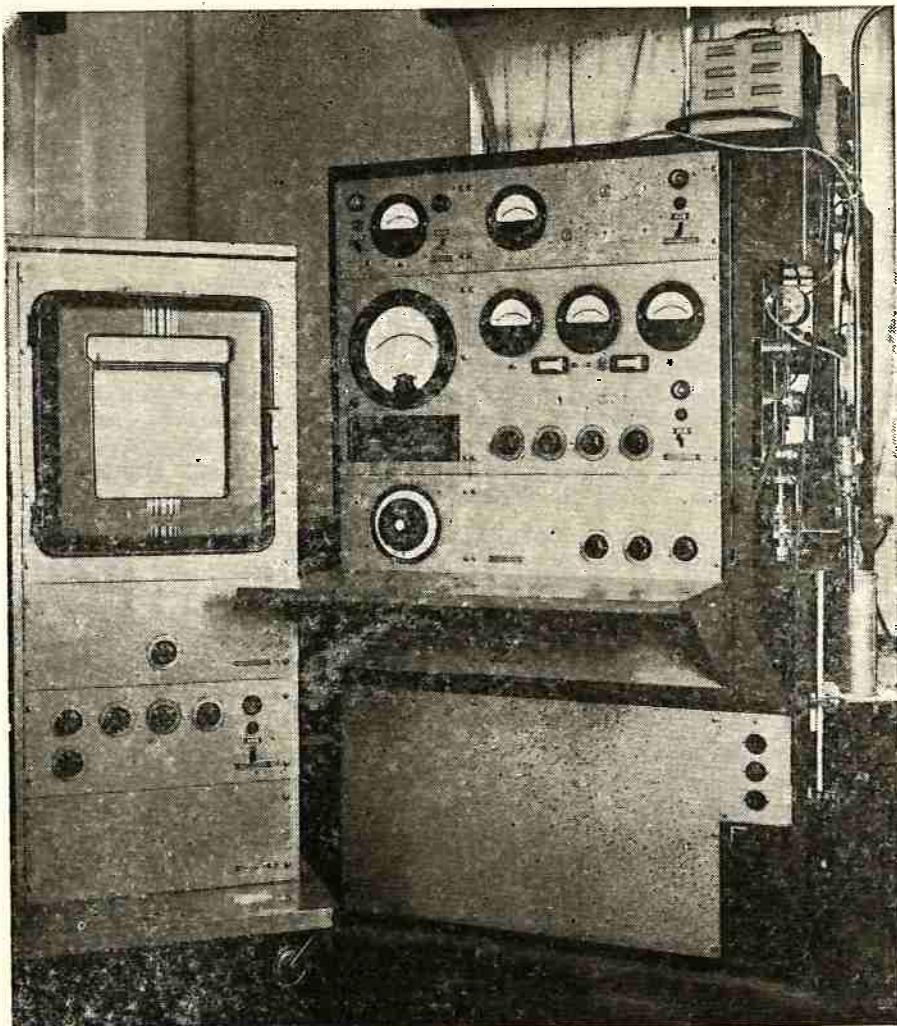


Figura 16 - Espectrômetro de massas AN 220a, ATLAS-WERKE AG.
72

5. MEDIDA DA RELAÇÃO DE ABUNDÂNCIA DOS ISÓTOPOS DE URÂNIO

A análise isotópica de hexafluoreto de urânio por espectrometria de massas é realizada com os íons que se formam em maior proporção quando o vapor de hexafluoreto é submetido ao bombardeio eletrônico na fonte iônica do espectrômetro de massas. Estes íons, que fornecem as maiores intensidades das correntes iônicas coletadas e, portanto, as maiores alturas dos picos registrados no espectro de massas, são os íons UF_5^+ (68, 69). As relações massa/carga destes íons contendo os isótopos ^{235}U e ^{238}U são iguais a 330 e 333, respectivamente. O uso destes íons predominantes no espectro de massas do UF_6 conduz a uma maior precisão na análise e, ao mesmo tempo, permite reduzir a quantidade do gás a ser introduzida na fonte iônica, o que é desejável em virtude das propriedades corrosivas deste composto. Nestas condições, na análise isotópica de hexafluoreto de urânio tem-se em vista registrar e medir a altura dos picos correspondentes aos íons $^{235}UF_5^+$ e $^{238}UF_5^+$.

A fim de realizar estas medidas com o espectrômetro de massas descrito, este instrumento foi operado dentro das seguintes condições: (1) Tensão de aceleração dos íons = 1370 V, (2) Energia dos elétrons de bombardeio = 75 eV, (3) Corrente de aquecimento do filamento = 5,6 A, (4) Temperatura da fonte iônica = 2500°C, (5) Corrente dos elétrons emitidos = 120-225 μ A, (6) Corrente dos elétrons coletados = 50-100 μ A. As larguras das fendas de entrada e de saída do tubo de separação eram iguais a 0,1 mm e 0,4 mm, respectivamente. Com estas larguras de fenda, o poder de resolução do espectrômetro, definido na base de 1% da altura máxima do pico (70), é igual a 540; este valor é suficientemente elevado para fornecer uma separação satisfatória entre os picos correspondentes aos íons UF_5^+ .

O procedimento adotado na realização das medidas de abundância isotópica, dentro das condições de operação apresentadas, consistia em introduzir inicialmente o hexafluoreto de urânio no sistema de admissão do espectrômetro, previamente posto em alto vácuo, que era medido com uma válvula Penning da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã). Nesta operação mantinha-se o escoamento contínuo do gás por meio da bomba de difusão e do "trap", resfriado com nitrogênio líquido, que se destinam à produção do alto vácuo no sistema de admissão. Ao mesmo tempo, a pressão do UF_6 gasoso presente no sistema de admissão era ajustada a valores compreendidos entre 10^{-1} e 10^{-2} Torr, por meio da manipulação das válvulas presentes neste sistema. Esta pressão era medida com auxílio de uma válvula do tipo par termoelectrônico, "Thermotron", da firma E. Leybold's Nachfolger (República Federal Alemã), ligada a um pequeno "trap" de aço inoxidável instalado no sistema de admissão.

A seguir, mantendo a corrente do eletro-imã no valor correspondente ao do feixe iônico de $^{235}UF_5^+$, o hexafluoreto de urânio era introduzido na fonte iônica do espectrômetro através da membrana de cobre perfurada. Nesta operação, a pressão no interior da fonte, compreendida entre 10^{-5} e 10^{-6} Torr, e a intensidade da corrente iônica correspondente aos íons $^{235}UF_5^+$ eram ajustadas aos valores desejados por meio da manipulação das válvulas do sistema de admissão, mantendo-se sempre o escoamento do gás através da fonte iônica com auxílio da respectiva bomba de difusão.

Mediante o ajuste dos sistemas da ótica iônica do espectrôme-

tro, o feixe iônico formado pelos íons $^{235}\text{UF}_5^+$ era então focalizado, de modo a fornecer a altura máxima de pico. A seguir, os picos dos íons $^{235}\text{UF}_5^+$ e $^{238}\text{UF}_5^+$ eram registrados mediante a variação da corrente do eletro-imã no sentido de obter-se a varredura dos feixes iônicos do isótopo mais leve ao mais pesado. Nesta varredura, utilizava-se a relação de sensibilidades de 1/100, a fim de obter alturas da mesma ordem de grandeza para os dois picos registrados. A Figura 17 mostra a forma dos picos e o poder de resolução no espectro de massas de UF_5 obtido para o hexafluoreto de urânio de composição isotópica natural.

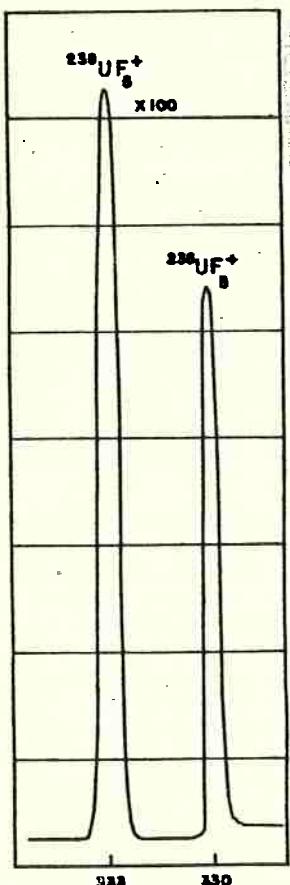


Figura 17 - Espectro de massas de UF_5^+

De um modo geral, eram registrados pelo menos 5 pares de picos. Admitindo, então, uma deriva linear do amplificador de corrente contínua, tomava-se como altura dos picos dos íons $^{235}\text{UF}_5^+$ e $^{238}\text{UF}_5^+$, a média das alturas dos respectivos picos registrados. Designando estas alturas de pico por h e h' , respectivamente, a relação das intensidades das correntes iônicas correspondentes aos íons $^{235}\text{UF}_5^+$ e $^{238}\text{UF}_5^+$ é dada por $h/100h'$, lembrando que a relação de sensibilidades usada era igual a 1/100. Como a relação das correntes iônicas é igual à relação das frações atômicas ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) dos isótopos de urânio presentes no hexafluoreto analisado (ou à relação das frações molares $N/(1-N)$ das moléculas isotópicas de UF_6), a relação de abundância R do isótopo leve ^{235}U e, de acordo com a definição a apresentada no Capítulo I, dada por:

$$R = \left(\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}} \right) = \frac{h}{100h'} \quad (89)$$

A fração atômica (^{235}U) dos isótopos ^{235}U (ou a fração molar N das moléculas isotópicas $^{235}\text{UF}_6$) é então expressa em porcentagem pela relação:

$$\left(^{235}\text{U} \right) = \frac{100 R}{R + 1} = \frac{100}{\left(^{238}\text{U}/^{235}\text{U} \right) + 1} \quad (90)$$

As medidas preliminares da relação de abundância de urânio natural foram realizadas com o hexafluoreto presente no reservatório pequeno R_1 , descrito no Capítulo II, que continha 95,8 g do material puro e de encontrava ligado diretamente ao sistema de admissão do espectrômetro. A finalidade destas medidas foi a de estabelecer o procedimento da análise isotópica e as condições de operação do aparelho.

A análise isotópica do hexafluoreto de urânio natural foi então executada, segundo o procedimento descrito, com o material puro existente no reservatório grande R_1 , também mencionado no Capítulo II, que se encontra ligado ao sistema de introdução e retirada do gas da centrífuga (Figura 10). As medidas foram efetuadas em dias diferentes durante a realização das experiências de separação dos isótopos de urânio. Os resultados obtidos mediante a aplicação das equações (89) e (90) e acompanhados

dos respectivos desvios padrão da média de 5 ou mais determinações são apresentados na Tabela III.

TABELA III
ABUNDÂNCIA ISOTÓPICA DE URÂNIO NATURAL

<u>Nº</u>	<u>$(^{238}\text{U}/^{235}\text{U})$</u>	<u>$(^{235}\text{U}) \%$</u>
1	$138,9 \pm 0,1$	$0,715 \pm 0,001$
2	$138,2 \pm 0,1$	$0,718 \pm 0,001$
3	$139,2 \pm 0,4$	$0,713 \pm 0,002$
4	$138,3 \pm 0,1$	$0,718 \pm 0,001$
5	$138,6 \pm 0,1$	$0,716 \pm 0,001$

A média dos 5 resultados apresentados na Tabela III fornecem para a relação $(^{238}\text{U}/^{235}\text{U})$ o valor $138,6 \pm 0,2$ e para a fração atómica de ^{235}U o valor $0,716 \pm 0,001$, os erros dados sendo os desvios padrão destas médias. Estes valores concordam muito bem com os valores apresentados na literatura, que são citados nos trabalhos de LOUNSBURY (71) e de DEBEVEC e colaboradores (72), na obra de BIRKENFELD, HAASE e ZAHN (70) e na tabela de isótopos organizada por HOLLANDER et al. (73).

Convém mencionar aqui que o urânio natural apresenta também o isótopo de massa 234, cuja fração atómica é de apenas 0,0056 % (73). A presença deste isótopo não foi constatada com o espectrômetro de massa utilizado. Em virtude de sua pequena abundância, este isótopo praticamente não interfere nos processos de separação dos isótopos de urânio, razão pela qual sua existência é completamente ignorada na aplicação das teorias apresentadas no Capítulo I.

A análise isotópica de urânio, na forma de hexafluoreto, vem de um modo geral acompanhada de sérias dificuldades resultantes, não sómente da massa relativamente grande dos íons UF_6^+ , que exige espectrômetros de massas com um elevado poder de resolução, como também da natureza extremamente corrosiva de hexafluoreto e da facilidade com que este composto se dissocia durante o bombardeio eletrônico. Em virtude desta decomposição do hexafluoreto, formam-se na fonte iônica depósitos sólidos, eletricamente isolantes, sobre as superfícies dos eletrodos dos sistemas da ótica iônica e eletrônica. Estas películas superficiais, graças à possibilidade de serem carregadas periodicamente por cargas parasitas, determinam o aparecimento de variações irregulares nos potenciais dos eletrodos, as quais não são mais compensadas pelos dispositivos de estabilização do espectrômetro. Consequentemente, após um certo tempo de funcionamento da fonte iônica, surgem flutuações ao acaso nas intensidades das correntes iônicas com diminuição simultânea do poder de resolução. Quando ocorre esta instabilidade dos feixes iônicos, caracterizada por oscilações irregulares no registro dos respectivos picos, não é mais possível realizar medidas de abundância isotópica. Então o único remédio é a retirada da fonte iônica do espectrômetro para submetê-la a uma posterior limpeza. Realizada esta limpeza, a fonte re-instalada no espectrômetro volta usualmente a apresentar o funcionamento normal. Nestas condições, na análise isotópica do UF_6 , a fonte iônica apresenta um

período limitado de funcionamento satisfatório, que é conhecido como a "vida" útil da fonte. Normalmente este período está compreendido entre 30 e 40 horas, dependendo da maneira segundo a qual a fonte é operada.

Uma outra dificuldade proveniente da decomposição do hexafluoreto de urânio, que se observa na análise sucessiva de amostras de composições isotópicas diferentes, é o chamado efeito de "memória", em virtude do qual a composição isotópica medida para uma dada amostra tende a ser viciada no sentido da composição da amostra anterior analisada pelo espectrômetro. Admite-se que este efeito seja causado por uma troca isotópica entre o hexafluoreto de urânio admitido na fonte e os depósitos não voláteis de urânio formados nas superfícies internas da fonte (68,74).

A natureza e a maneira de formação dos depósitos resultantes da decomposição de UF_6 no interior da fonte iônica ainda não estão suficientemente esclarecidas. De um modo geral, o composto que predomina nestes depósitos é o tetrafluoreto de urânio UF_4 ; todavia, dependendo da pureza do UF_6 e da limpeza do espectrômetro, os depósitos podem apresentar outros compostos, como oxifluoretos e fluoretos intermediários de urânio (68, 74). A formação dos depósitos pode ser proveniente da ação corrosiva do UF_6 com o material da fonte, da decomposição térmica do UF_6 no filamento de aquecimento, da ação dos elétrons sobre os íons formados na fonte ou, ainda, da reação do UF_6 com água e outros compostos adsorvidos nas superfícies dos elementos da fonte (68, 75).

Nas análises isotópicas por nós realizadas, a primeira das dificuldades mencionadas, que determina a "vida" útil da fonte, foi particularmente acentuada durante a execução das primeiras experiências de separação de isotópos de urânio. Nestas experiências, as medidas de abundância isotópica foram efetuadas condensando-se inicialmente o UF_6 no pequeno "trap" resfriado com nitrogênio líquido, que se encontra ligado ao sistema de admissão do espectrômetro, como já foi mencionado. Este procedimento foi adotado, porque com as pressões de UF_6 estabelecidas diretamente no interior do sistema de admissão, o diâmetro do orifício da membrana de cobre perfurada em demasiadamente pequeno para fornecer pressões suficientemente elevadas no interior da fonte e, portanto, alturas convenientes para o registro dos picos. A seguir, removido o nitrogênio líquido, o UF_6 coletado no pequeno "trap" era sublimado no interior de uma pequena secção do sistema de admissão. Desta maneira era possível estabelecer pressões de UF_6 suficientemente altas neste sistema, de modo a se obter o registro dos picos com a altura desejada. Este procedimento, não somente era demorado e descontínuo, como também apresentava a desvantagem de permitir a condensação simultânea de impurezas, como o HF , no "trap" em questão, as quais, a seguir, eram introduzidas com o UF_6 na fonte iônica. Além disto, em virtude do controle imperfeito da pressão na fonte iônica, obtido por ajuste manual das válvulas no sistema de admissão, frequentemente introduzia-se na fonte uma quantidade excessiva de hexafluoreto. Este excesso de UF_6 e as impurezas, que o acompanhavam, determinaram a formação de quantidades relativamente grandes de depósitos e conduziam a períodos de funcionamento da fonte, que não chegavam a ser superiores a 20 horas.

A fim de diminuir esta dificuldade e ao mesmo tempo aumentar a velocidade de análise, a membrana de cobre perfurada foi substituída por outra com um orifício de maior diâmetro, e a introdução do UF_6 na fonte iônica passou a ser realizada através desta membrana, segundo o procedimento anteriormente descrito sem a condensação previa no peque-

no "trap" ligado ao sistema de admissão. O diâmetro do orifício desta membrana foi escolhido de modo a permitir a entrada na fonte iônica de uma quantidade suficiente de UF_6 , quando se realizava simultaneamente o escoamento deste gás através do sistema de admissão por meio da bomba de difusão ligada a este sistema. Como, nestas condições, a maior parte do gás era condensada no "trap" ligado a esta bomba de difusão, a introdução de impurezas na fonte iônica foi consideravelmente reduzida, prolongando a "vida" útil da fonte. Este procedimento, além de ser mais rápido e permitir um ajuste mais fácil da pressão de UF_6 no interior da fonte com a introdução de menores quantidades de gás, ainda possibilitou a realização de medidas contínuas de abundância isotópica durante a execução das experiências de separação.

Quanto ao efeito da "memória", este não foi constatado nas análises isotópicas sucessivas por nós realizadas durante as experiências de separação dos isotópos de urânio.

A fonte iônica, quando se apresentava imprestável para a realização da análise isotópica, era retirada do espectrômetro e inteiramente desmontada. A limpeza de suas peças metálicas era então realizada mediante a fervura numa solução concentrada de oxalato de amônio, seguida da lavagem com água e secagem em estufa. Como esta operação usualmente não removia a totalidade dos depósitos, as peças eram polidas com uma pasta polidora de metais e, a seguir, imersas numa solução de sabão em pó para remover a pasta, lavadas com água destilada e acetona e finalmente secas em estufa. As peças não metálicas e os isoladores de cerâmica eram limpas por meio da imersão na mistura sulfo-crômica quente, seguida da lavagem cuidadosa com água destilada e da secagem em estufa. O filamento de aquecimento era submetido a uma limpeza eletrólítica introduzindo-o como anodo, junto com uma pequena chapa de aço inoxidável, no eletrólito formado de 50 % de ácido fosfórico a 50 % de glicerina. Utilizando-se, como catodo, uma chapa de cobre dobrada em forma de um cilindro ao redor das peças, a eletrólise, realizada com uma corrente de 2 a 3 A durante cerca de 25 min., removia completamente os depósitos presentes no filamento. O filamento limpo era, a seguir, lavado com água destilada e seco em estufa. A fonte era então cuidadosamente montada sem contato manual e re-instalada no espectrômetro. Após cada uma das limpezas da fonte iônica, realizadas segundo este procedimento, o espectrômetro voltou a funcionar em perfeitas condições.

Durante a produção do alto vácuo na fonte iônica e no tubo de separação, realizada após cada uma das re-instalações da fonte, estas unidades do espectrômetro eram aquecidas por meio dos aquecedores externos, a fim de reduzir ao mínimo possível a quantidade de água adsorvida nas paredes internas do espectrômetro. Esta precaução é indispensável ao prolongamento da "vida" da fonte, pois, em virtude da reação com o hexafluoreto, a formação de depósitos na fonte iônica aumenta com a quantidade desta água residual presente na aparelhagem. O controle de teor de água existente na fonte era efetuado mediante o registro do espectro de "background" e o hexafluoreto de urânio somente era introduzido na fonte após se constatar uma altura suficientemente pequena do pico correspondente aos íons H_2O^+ . O espectro de "background", registrado também após a realização da análise isotópica, permitia, por outro lado, fornecer uma informação acerca das reações ocorridas durante a permanência do UF_6 no interior da fonte.

Com as precauções que acabam de ser descritas, isto é, a intro-

dução de pequenas quantidades de UF_6 na fonte sob bombeamento contínuo no sistema de admissão, limpeza cuidadosa da fonte e produção de um rigoroso alto vácuo no interior de espectrômetro, foi possível obter-se as determinações precisas da abundância isotópica de urânio apresentadas na Tabela III.

Finalmente, cabe mencionar aqui que as dificuldades principais observadas na análise isotópica de UF_6 , que são a limitada "vida" da fonte e o efeito de "memória", podem ser consideravelmente reduzidas mediante o emprégo da fonte iônica de feixe molecular. Fontes iônicas deste tipo, com uma "vida" útil compreendida entre 150 e 2000 horas e com efeito de "memória" desprezível, foram recentemente desenvolvidas por BÜLANG e WELGE (75), por MC KNIGHT (76) e por BRUNNÉE (77).

CAPÍTULO IV

EXPERIÊNCIAS DE SEPARAÇÃO REALIZADAS

A fim de investigar a separação dos isótopos de urânio, na forma de hexafluoreto, com a centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica é necessário considerar os seguintes parâmetros operacionais: (1) frequência de rotação ou velocidade tangencial na parede interna do rotor, (2) temperatura do rotor, (3) diferença de temperatura entre as tampas do rotor e (4) vazão do gás através da centrífuga. No presente trabalho, os dois primeiros destes parâmetros foram mantidos constantes. Assim a centrífuga foi operada com a frequência de rotação máxima, a fim de obter a maior separação possível e o rotor foi mantido numa temperatura suficientemente elevada, de modo a evitar-se a condensação do hexafluoreto de urânio na sua parede interna.

Dentro destas condições de operação, a separação dos isótopos de urânio pode ser completamente estudada com a centrífuga em questão mediante a realização de apenas dois tipos de experiências, a saber: (1) experiências em que se mede o enriquecimento do isótopo ^{235}U em função da diferença de temperatura entre as tampas do rotor, quando a centrífuga é atravessada por uma vazão constante de UF_6 , e (2) experiências em que se mede o enriquecimento em função da vazão, mantendo-se constante a diferença de temperatura entre as tampas do rotor.

Na presente investigação, o primeiro tipo de experiências foi realizado em condições de refluxo total, mantendo-se a passagem de uma vazão muito pequena e constante através da centrífuga. A finalidade destas experiências, designadas por experiências de enriquecimento estático, foi a de estudar a separação dos isotopos de urânio em função da contracorrente gasosa criada no interior da centrífuga pela diferença de temperatura entre as tampas do rotor. Quanto às experiências do segundo tipo, estas foram efetuadas com duas diferenças de temperaturas entre as tampas do rotor. Nestas experiências, denominadas de experiências de enriquecimento dinâmico, a separação dos isótopos de urânio foi investigada em condições de produção da centrífuga.

Para levar a efeito a realização destas experiências de separação, a centrífuga foi inicialmente submetida a experiências preliminares com a finalidade de acertar as condições e o modo de operação. Estas experiências e as experiências de enriquecimento estático e dinâmico serão descritas no presente capítulo, a descrição sendo precedida pela apresentação do modo de operar estabelecido e pela análise do comportamento mecânico da centrífuga.

I. OPERAÇÃO E COMPORTAMENTO MECÂNICO DA CENTRÍFUGA ZG3-A

A centrífuga foi operada durante a realização de todas as experiências em regime de plena carga, ao qual corresponde a frequência má

xima de 516 ± 2 Hz e, portanto, a velocidade tangencial na parede interna do rotor de 300 ± 1 m/s.

A fim de evitar a condensação do hexafluoreto presente no interior da centrífuga é necessário que a pressão $p(r_2)$ deste composto gasoso na parede interna do rotor seja menor do que a pressão de vapor p correspondente à temperatura do rotor. Nestas condições, a pressão de UF_6 no eixo do rotor p_0 não pode ultrapassar um valor máximo, o qual, para uma dada frequência de rotação e uma dada temperatura do rotor, é determinado segundo a equação (43) por:

$$\frac{p(r_2)}{p_0} = \exp \frac{M(\omega r_2)^2}{2RT} \quad (91)$$

Com auxílio desta equação e da equação que relaciona a pressão do vapor de UF_6 (sólido) com a temperatura, pode-se então escolher a pressão axial máxima em função da temperatura do rotor, de modo a não ocorrer a condensação do vapor de UF_6 na parede do rotor. Assim, para a centrífuga em questão, cuja velocidade tangencial, correspondente à frequência de rotação de 516 Hz, é $\omega r_2 = 299,7$ m/s e lembrando que a massa molecular de UF_6 é 352,0 e $R = 8,314 \times 10^7$ erg/ $^\circ\text{K}/\text{mol}$, da equação (91) resulta:

$$\log \frac{p(r_2)}{p_0} = \frac{825,6}{T} \quad (92)$$

Por outro lado, uma relação entre a pressão de vapor de UF_6 (s) e a temperatura, que é apropriada ao presente estudo, é a equação de Clausius-Clapeyron apresentada na obra de KATZ E RABINOWITCH (53) sob a forma:

$$\log p = 10,74 - \frac{2592}{T} \quad (93)$$

que é válida entre $12,5^\circ\text{C}$ e $50,2^\circ\text{C}$ com p expresso em Torr. Da condição necessária para não haver condensação de UF_6 na parede do rotor, resulta então das equações (92) e (93) que, no caso limite de $p = p(r_2)$, a pressão axial máxima é dada por:

$$\log p_0 = 10,74 - \frac{3417,6}{T} \quad (94)$$

Esta equação se encontra representada pelo gráfico de p_0 em função da temperatura centígrada t dado na Figura 18.

Nas experiências de separação dos isótopos de urânio é necessário que a pressão axial de UF_6 , compatível com a condição de não condensação, seja a mais elevada possível, em virtude da grande resistência ao escoamento do gás, oferecida pelos eixos tubulares da centrífuga em questão. Por outro lado, para que o material do rotor possa continuar a resis-

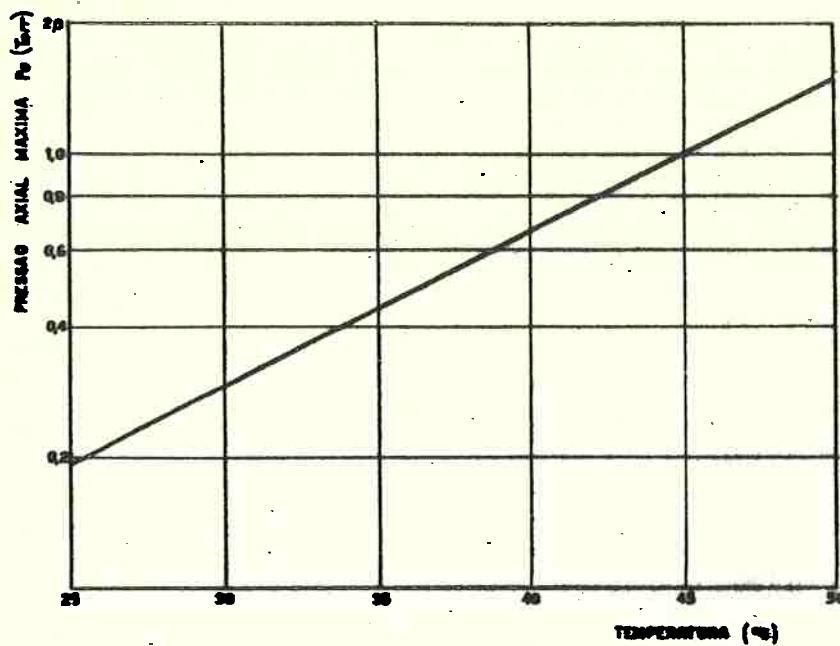


Figura 18 - Gráfico da pressão axial máxima em função da temperatura

tir aos elevados esforços de tração, que atuam na parede durante o movimento da rotação, a temperatura do rotor não pode aumentar indefinidamente. Por estas razões, nas experiências por nós realizadas, foi escolhida a pressão axial máxima de 1 Torr à qual corresponde, no gráfico da Figura 18, uma temperatura do rotor de 45°C. Nesta condição a pressão do gás na parede do rotor, calculada pela equação (92), é $p(r_2) = 393$ Torr, enquanto que a pressão de vapor do UF_6 a 45°C, calculada com auxílio da equação mais precisa estabelecida por OLIVER et al. (53), é dada por:

$$\log p = 6,38363 + 0,0075377 t - 942,76/(t + 183,416) \quad (95)$$

é igual a 394 Torr. Em vista destes dados, a fim de poder utilizar a pressão axial máxima de 1 Torr sem o perigo da condensação de UF_6 , todas as experiências de separação dos isótopos de urânio foram realizadas mantendo-se a temperatura do rotor compreendida entre 45°C e 46°C por meio da circulação de água quente, fornecida pelo termostato mencionado no Capítulo II, através da camisa que circunda o rotor. As temperaturas indicadas foram lidas com termômetros instalados, respectivamente, na saída e na entrada desta camisa.

Antes de iniciar propriamente a separação dos isótopos de urânio com a frequência e a temperatura do rotor mencionadas, o modo de operar a centrífuga obedeceu à seguinte sequência de operações: (1) produção do alto vácuo no sistema de introdução e retirada do gás da centrífuga, (2) acionamento dos circuitos de óleo e de vácuo da centrífuga, (3) lavagem do rotor com nitrogênio seco, (4) acionamento da centrífuga, (5) a

cionamento do circuito da água de resfriamento e introdução de hidrogênio na camisa externa da centrífuga, (6) aceleração da centrífuga até o regime de plena carga e (7) estabilização das temperaturas das tampas do rotor.

Na primeira destas operações, todo o sistema de introdução e retirada de gás da centrífuga era posto em alto vácuo com a finalidade de constatar a presença de eventuais vazamentos. Durante a realização desta operação, era também acionado o termostato da água de aquecimento e aberto o labirinto inferior; este era submetido à limpeza com tri-cloro-etileno, no caso de constatar-se a presença de óleo, sendo a seguir novamente fechado.

Verificada a estanqueidade do sistema de introdução e retirada de gás, era acionado o circuito de óleo da centrífuga, observando-se então o levantamento do rotor e o funcionamento perfeito deste circuito através das pressões indicadas pelos manômetros e do nível de óleo das bombas de engrenagem. A seguir, eram postos em funcionamento os circuitos de vácuo da camisa externa e dos labirintos, os quais permaneciam em funcionamento durante toda a realização da experiência. Quando a pressão no interior da camisa externa se apresentava suficientemente reduzida (4 a 10 Torr), era iniciada a produção do vácuo no interior do rotor por meio da bomba de vácuo auxiliar B₃ (Figura 10). Ao mesmo tempo, a produção de alto vácuo no sistema de introdução e retirada de gás era interrompida (fechamento da válvula 46 da Figura 10), mantendo-se então este sistema em vácuo primário por intermédio do bombeamento da bomba de vácuo rotativa B₁ e da abertura da válvula 47 (Figura 10). Fechada a válvula 41, esta bomba era utilizada a seguir para continuar a produção do vácuo no interior do rotor até o estabelecimento de pressões de cerca de 10⁻¹ Torr, medidas com "Thermotron" Th da Figura 10.

O rotor era agora submetido a duas lavagens sucessivas com hidrogênio seco, introduzindo-se este gás no seu interior sob a pressão de 20 Torr, medida com o manômetro da membrana capacitiva e retirando-o com auxílio da bomba de vácuo B₃. A finalidade destas lavagens era a de remover, da melhor maneira possível, a umidade presente nas paredes internas do rotor. Terminada esta operação, após o fechamento da válvula 41, a realização do vácuo no interior do rotor era continuada por meio da ação da bomba de vácuo rotativa B₁ até a introdução do UF₆.

A seguir, após a re-verificação das pressões do circuito de óleo, a calibração dos medidores de desbalanço e de escorregamento e a medida da temperatura das tampas do rotor, a centrífuga era posta em funcionamento, anotando-se então o início da centrifugação e a corrente que atravessa o resistor, destinado a variar a velocidade da centrífuga, que é mencionado no Capítulo II. Mantida a resistência deste resistor no seu valor máximo, a frequência da rotação da centrífuga aumentava rapidamente até cerca de 300 Hz enquanto que a corrente, que inicialmente era igual a 14 A, diminuía até 8 A.

Atingidas frequências compreendidas entre 200 e 300 Hz, normalmente era acionado o circuito da água de resfriamento e iniciada a passagem de hidrogênio através da camisa externa da centrífuga sob pressão de 4 a 6 Torr.

Depois de alcançar a frequência constante de cerca de 300 Hz, a centrífuga era acelerada continuamente por meio da diminuição da resistência do resistor acima mencionado, de modo a manter a corrente, que o

atravessa, em valores compreendidos entre 8 e 8,5 A e não permitindo que o escorregamento ultrapassasse o valor de 7 Hz. A diminuição da resistência era efetuada manualmente por meio de uma manivela até o resistor se encontrar em curto circuito. Neste instante, que era registrado, a centrífuga atingia o regime de plena carga. Usualmente, o tempo decorrido entre o instante de acionamento da centrífuga e o instante em que se encontra em plena carga era de 40 min. No decorrer da aceleração da centrífuga, as variações do circuito da água de resfriamento eram ainda ajustadas periodicamente até apresentarem seus valores máximos.

Durante o período compreendido entre o acionamento da centrífuga e o estabelecimento do regime de plena carga eram realizadas, frequentemente, medidas das seguintes grandezas, em função do tempo: (1) temperatura das tampas do rotor, (2) temperatura do labirinto superior, (3) frequência da centrífuga, (4) desbalanço e precessão do rotor, (5) tensão do gerador de frequências médias e (6) vácuo no interior do rotor. Além disto, periodicamente eram observadas as pressões indicadas pelos manômetros do circuito de óleo e adicionado óleo a este circuito, a fim de manter o funcionamento perfeito das bombas de engrenagem.

Encontrando-se a centrífuga em plena carga, era aguardada a estabilização nas temperaturas das tampas do rotor, a qual usualmente demorava cerca de 2 horas. Obtida a constância na medida destas temperaturas, com a introdução de UF_6 no rotor era então iniciada a separação dos isótopos de urânio. De um modo geral, o tempo necessário para realização de todas estas operações, a partir do início da produção de alto vácuo no sistema de introdução e retirada de gás até a introdução de UF_6 na centrífuga, era igual a 6 horas.

Terminada a realização da experiência da separação de isótopos, após a interrupção do fornecimento de UF_6 à centrífuga, era iniciado o vácuo no interior do rotor. A seguir, a centrífuga era desligada, anotando-se o instante em que se realizava esta operação. Ao mesmo tempo, era desligado o circuito da água de resfriamento e cessada a circulação de hidrogênio através da camisa externa da centrífuga. Durante esta desaceleração da centrífuga eram realizadas medidas da frequência, do desbalanço e da precessão do rotor, anotando-se também o instante da parada completa da centrífuga.

Após a parada da centrífuga e a realização do vácuo no interior de seu rotor, eram fechadas todas as válvulas que colocam a centrífuga em comunicação com o sistema de introdução e retirada de gás. Então introduzia-se nitrogênio seco no interior do rotor com uma pressão maior do que a atmosférica, a fim de evitar a entrada posterior de ar úmido no rotor. A seguir eram desligados os circuitos de vácuo da camisa externa e dos labirintos, deixando-se então entrar ar nesta secção da centrífuga. Nestas condições, tanto a introdução de nitrogênio no rotor como a evacuação deste, eram sempre realizadas de modo a manter-se no interior do rotor uma pressão gassosa superior à existente na camisa externa. Com esta precaução é evitada a entrada de vapores de óleo no rotor através dos anéis de vedação. Finalmente, encontrando-se a camisa externa e os labirintos na pressão atmosférica, era desligado o circuito de óleo e, ao mesmo tempo, todo o sistema de introdução e retirada de gás era novamente posto em alto vácuo.

Os dados de operação colhidos durante o funcionamento da centrífuga em regime de plena carga numa das experiências de separação de isótopos realizadas são apresentados na Tabela IV.

TABELA IV
DADOS DE OPERAÇÃO DA CENTRÍFUGA ZG3-A
EXPERIÊNCIA N° 2

1. CIRCUITO DE ÓLEO

Pressão de óleo (kg/cm^2)

Mancais de amortecimento	1,5
Mancal de colar superior	3,0
Mancal de pressão	4,0
Bomba superior	5,0
Mancais de colar inferiores	3,8
Bomba inferior (alta pressão)	10,0
Bomba inferior (baixa pressão)	1,5

2. CIRCUITOS DE VÁCUO

Vácuo na camisa sem hidrogênio:	1 Torr
Vácuo na camisa com hidrogênio:	6 Torr
Vácuo no rotor:	0,002 Torr

3. CIRCUITOS DA ÁGUA DE AQUECIMENTO E DA ÁGUA DE RESFRIAMENTO

Temperatura na entrada da camisa termostática:	46,5°C
Temperatura na saída da camisa termostática:	46,0°C
Temperatura da água de resfriamento:	8°C
Vazão máxima da água de resfriamento:	16 l/min

4. DADOS MECÂNICOS E ELÉTRICOS

Frequência: 515 Hz Tensão: 159 V Escorregamento: 4,8 Hz

	Desbalanço	Precessão (osciloscópio)
Extremidade superior do rotor:	0,001 mm	1 mm
Extremidade inferior do rotor:	0,015 mm	1 mm

O comportamento mecânico da centrífuga ZG3-A pode ser investigado nos moldes do estudo já levado a efeito por RAVAGNANI e JORDAN (78) com a centrífuga ZG3-B. Para isto é necessário considerar o andamento dos parâmetros da centrífuga, como a frequência, os desbalanceos do rotor, a temperatura das tampas e a temperatura do labirinto superior, no decorrer das diversas fases de operação. Como o comportamento operacional destes parâmetros foi idêntico em todas as experiências realizadas, basta analisar apenas os valores obtidos durante a realização de uma destas experiências, a saber, a experiência n° 2, à qual se refere a Tabela IV.

Os dados da frequência da centrífuga colhidos nesta experiência em função do tempo são apresentados na Figura 19. Esta Figura mostra

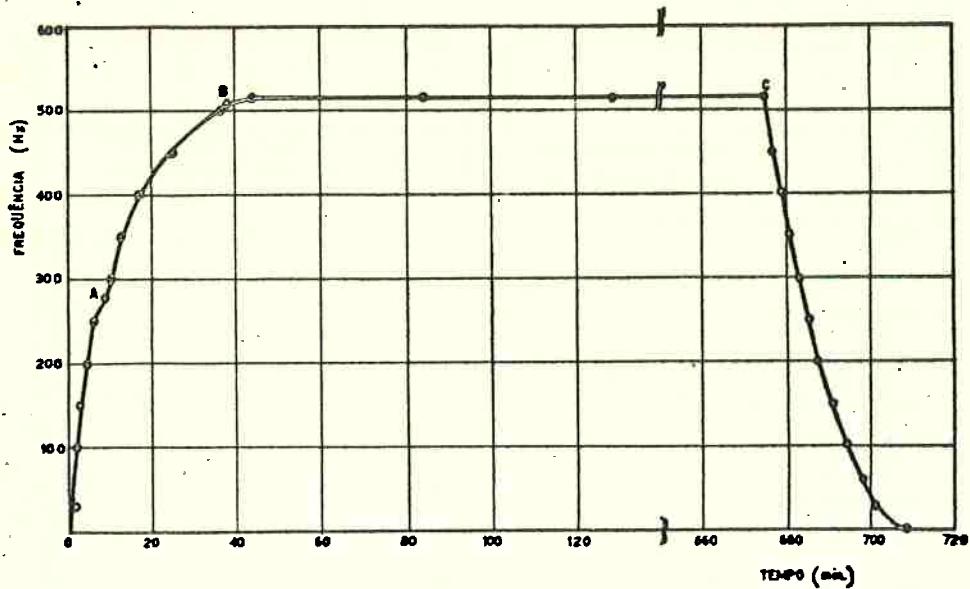


Figura 19 - Frequência de rotação da centrífuga ZG3-A

que, acionada a centrífuga, sua frequência aumenta rapidamente durante os 6 minutos iniciais até alcançar o valor de 250 Hz. A seguir, a aceleração diminui até o ponto A da figura, ao qual corresponde a frequência de 280 Hz. Durante este período, que designaremos por período de aceleração natural, a resistência do resistor, através do qual circula a corrente de acionamento da centrífuga, é mantida no seu valor máximo. Se a resistência não for alterada, a frequência tende a aumentar ligeiramente até apresentar um valor constante de cerca de 300 Hz. Por este motivo, a partir do ponto A, a resistência é diminuída e a diminuição é realizada de modo a manter a corrente de acionamento em 8 A, como já fôra mencionado. Durante este período de aceleração forçada, a frequência da centrífuga aumenta sucessivamente de cerca de 10 Hz após cada uma das diminuições efetuadas. Graças a este procedimento, não ocorrem aumentos bruscos de frequência, que poderiam solicitar demasiadamente os foles elásticos presentes nos eixos tubulares da centrífuga, e a aceleração varia de acordo com a diminuição da resistência realizada. No ponto B da Figura 19, o resistor é posto em curto circuito e, a seguir, a centrífuga entra em regime de plena carga com a frequência constante de 515 Hz. A centrífuga permaneceu nesta frequência, medida periodicamente, durante o intervalo de tempo de 10 h 37 min, no qual foi realizada a separação de isótopos. Devido a este período, o motor de acionamento da centrífuga foi desligado. Este instante corresponde ao ponto C da Figura 19, a partir do qual se inicia a desaceleração da centrífuga que durou 34 min até a parada completa da máquina.

A Figura 20 apresenta os gráficos dos desbalanços das extremidades do rotor em função da frequência, que foram construídos com auxílio dos dados medidos durante os períodos de aceleração e desaceleração da centrífuga. Observa-se destes gráficos que, tanto a extremidade superior como a extremidade inferior do rotor apresentam desbalanços máximos em frequências compreendidas entre 0 e 50 Hz. Dado o dimensionamento do rotor e dos eixos tubulares que o sustentam, estes máximos cor-

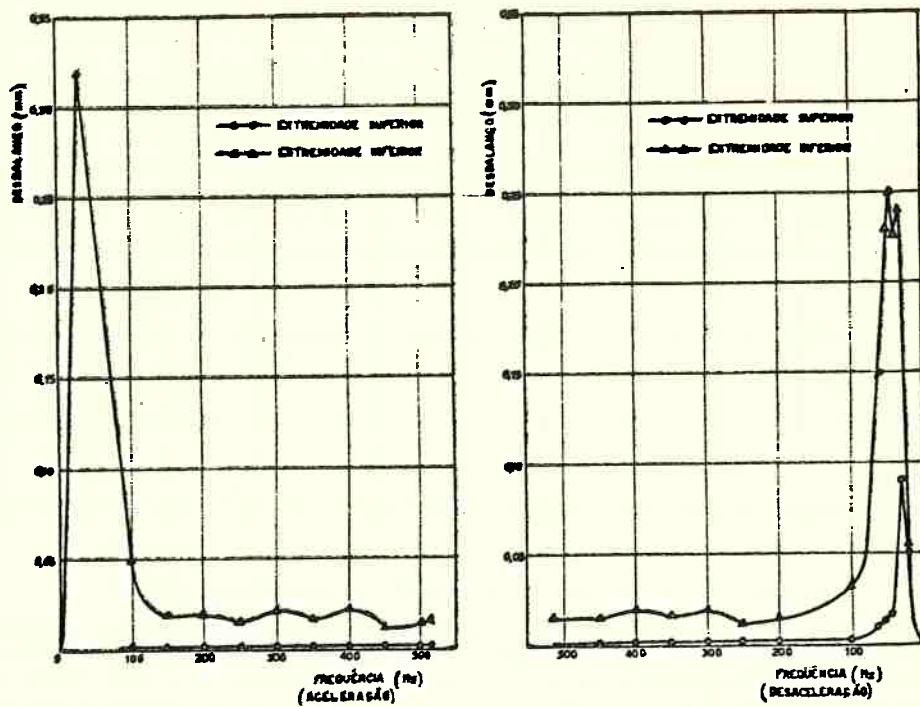


Figura 20 - Desbalanços do rotor da centrifuga ZG3-A

respondem às frequências críticas dos eixos tubulares. Nestas frequências, a flexão que os eixos sofrem, em virtude de seu movimento de rotação, apresenta os maiores valores, os quais determinam então os desbalanços máximos observados. Durante a aceleração da centrifuga, o desbalanço máximo da extremidade inferior do rotor é igual a 0,32 mm e ocorre na frequência de 30 Hz, enquanto que o valor corresponde à extremidade superior não pôde ser observado. Durante a desaceleração, a extremidade inferior do rotor apresenta dois desbalanços máximos iguais a 0,25 mm e 0,24 mm, que se verificam nas frequências de 43 Hz e 30 Hz, respectivamente. Quanto à extremidade superior, esta apresenta apenas um desbalanço máximo igual a 0,09 mm durante a desaceleração da centrífuga. Convém mencionar que no período da aceleração também deveriam ocorrer dois desbalanços máximos na extremidade inferior do rotor; todavia, como na parte inicial deste período a variação da frequência da centrífuga é muito elevada, sómente foi possível observar um destes máximos. Em todas as outras frequências os desbalanços da extremidade inferior oscilam entre 0,015 mm e 0,020 mm, enquanto que o da extremidade superior se mantém praticamente constante e igual a 0,001 mm. Durante o funcionamento em plena carga, os desbalanços são iguais a 0,015 mm e 0,001 mm para as extremidades inferior e superior do rotor, respectivamente, como foi indicado na Tabela IV. A manutenção destes pequenos desbalanços do rotor, durante o funcionamento da centrífuga, é uma condição necessária para evitar o atrito dos eixos com os anéis de vedação, já que a distância entre estes anéis e os eixos não deve ser superior a 0,05 mm.

A variação da temperatura das tampas do rotor tem função do

tempo é mostrada na Figura 21. O ponto A desta figura marca o início do período da aceleração forçada da centrífuga. No instante correspondente ao ponto D, foram iniciadas a introdução de hidrogênio na camisa externa e a circulação da água de resfriamento. Em virtude da ação destes fatores, a curva da temperatura da tampa superior em função do tempo apresenta uma ligeira inflexão ao redor do ponto D, enquanto que na curva correspondente à tampa inferior se constata um efeito mais pronunciado, que conduz à formação de um mínimo. Este mínimo provém da proximidade com a qual a serpentina, através da qual circula a água de resfriamento, se encontra da tampa inferior. Por este motivo, após a passagem pelo mínimo, a elevação da temperatura da tampa inferior se torna menor do que a da tampa superior. No ponto B da Figura 21, a centrífuga entra em regime de plena carga e as temperaturas continuam a aumentar até a sua estabilização, que ocorre no ponto E. A partir deste instante, as temperaturas das tampas se matêm constantes e apresentam uma diferença de $14,4^{\circ}\text{C}$, na qual foi realizada a experiência de separação em questão. O tempo necessário para se obter a estabilização das temperaturas após se atingir o regime de plena carga foi de cerca de 3 horas. Nas outras experiências de separação de isótopos foi possível reduzir este tempo a 2 horas por meio da antecipação do início da circulação de hidrogênio e da água de resfriamento.

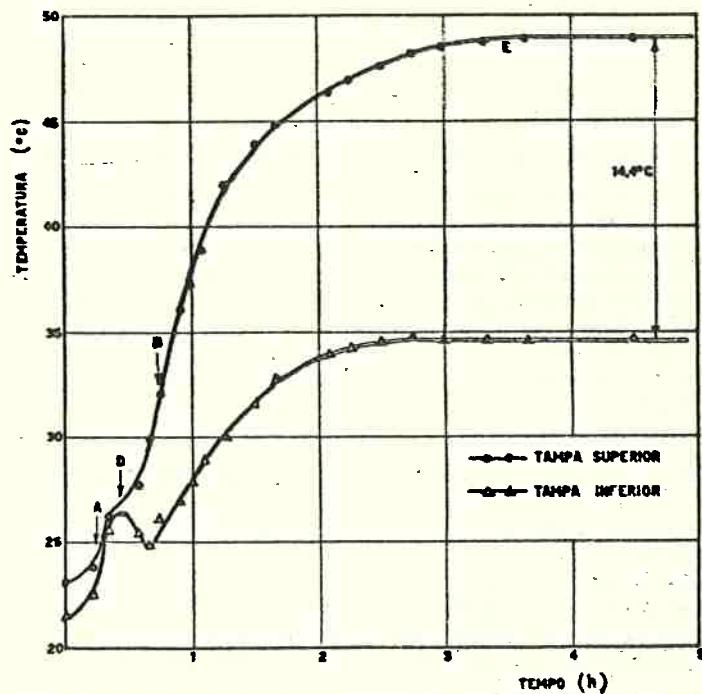


Figura 21 - Temperatura das tampas do rotor da centrífuga ZG3-A

Durante a realização das experiências de separação pode ocorrer o contato entre os eixos e os anéis de vedação, quer devido a uma centragem imperfeita dos eixos, quer devido ao ataque do UF_6 com o material dos anéis de vedação. Este contato é percebido durante o funcionamento da centrífuga através de um ruido muito intenso que provém, principal-

frente, do labirinto superior. Além disto, quando o contato se dá com os anéis deste labirinto, o calor produzido pelo atrito determina um aquecimento anormal do labirinto. A fim de medir este efeito de um modo mais quantitativo, foi realizada a medida da temperatura do labirinto superior durante as diversas fases da operação da centrífuga por meio de um termômetro introduzido num orifício do labirinto repleto de óleo. A Figura 22 apresenta as temperaturas do labirinto superior, assim medidas a partir do instante em que a centrífuga atingiu o regime de plena carga. Observa-se nesta figura que a temperatura do labirinto superior aumenta gra-

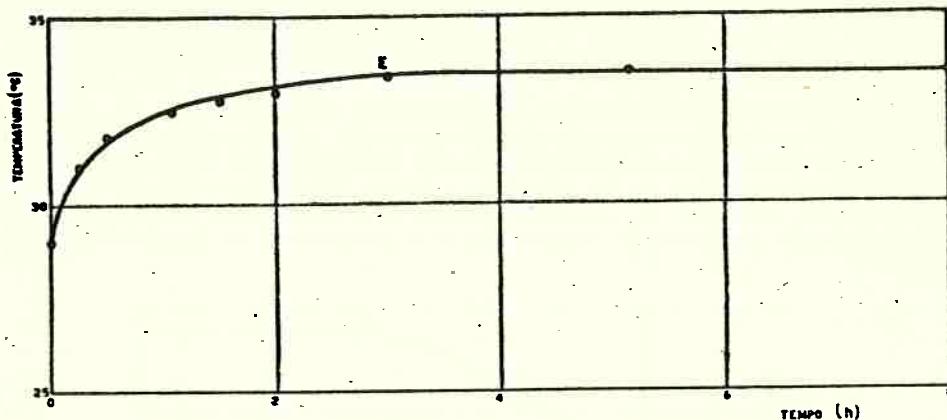


Figura 22 - Temperatura do labirinto superior da centrífuga ZG3-A

dualmente até o ponto E, que corresponde à estabilização das temperaturas do rotor. A partir deste instante, a temperatura do labirinto superior se mantém constante e igual a 33,5°C, mesmo após a introdução de UF₆ no rotor da centrífuga. A ausência de oscilações ou de uma elevação brusca na temperatura do labirinto indica que durante a realização da experiência em questão não se verificou o contato entre o eixo superior e os anéis de vedação. No caso da ocorrência desta anomalia, foi adotada a norma de desligar o acionamento da centrífuga, quando a temperatura chegava a ser igual a 45°C.

2. MODO DE REALIZAÇÃO DAS EXPERIÊNCIAS DE SEPARAÇÃO

Na realização e medida da separação dos isótopos de urânio, obtida a estabilização das temperaturas do rotor em regime de plena carga, foi empregado o seguinte procedimento: (1) enchimento do rotor com o hexafluoreto de urânio, (2) ajuste das vazões gasosas no sistema de introdução e retirada de gás da centrífuga, (3) transporte do UF₆ deste sistema ao espectrômetro de massas e (4) realização da análise isotópica de UF₆.

Antes de efetuar estas operações, o hexafluoreto de urânio contido no reservatório R₁ (Figura 10) era colocado na temperatura de 0°C por meio da mistura água-gelo, a fim de apresentar uma pressão de vapor constante. Estando então fechadas as válvulas 10 e 29 e aberta a válvula 2 (Figura 10), o enchimento do rotor era iniciado por meio da passagem de UF₆ através da válvula 5 depois da abertura da válvula 1. Anotado o instante em que se iniciou o enchimento do rotor, a vazão de alimentação era medida continuamente com o medidor de vazão MVI, enquanto que a pres-

são da alimentação na saída deste medidor era lida no manômetro de membrana capacitiva MMC através da válvula 7. Ajustadas estas grandezas ao valor desejado, acompanhava-se o enchimento do rotor com a medida da pressão axial no rotor. Esta medida era realizada com o manômetro de membrana capacitiva após o fechamento da válvula 7 e a abertura das válvulas 29 e 38. Desta maneira, foi possível efetuar o enchimento do rotor de modo a não ultrapassar a pressão axial máxima de 1 Torr. O enchimento do rotor era terminado com o fechamento das válvulas 1 e 5, quando no interior do rotor se encontrava a quantidade de UF_6 desejada. Esta quantidade era calculada a partir do tempo de enchimento e da vazão de alimentação medida com o medidor MVI, descontando-se a quantidade de gás presente nos tubos de ligação e nos labirintos, cujo volume é aproximadamente igual a 8,5% do volume do rotor.

Terminado o enchimento do rotor, as válvulas 5 e 1 eram de novo abertas e a pressão da alimentação era imediatamente ajustada ao valor que apresentava anteriormente. Então, mantidas abertas as válvulas 10 e 29, eram ajustadas as vazões através dos três medidores, de modo a obter-se o processo de separação simétrico. Neste ajuste, realizado mediante a manipulação das válvulas 1, 13 e 31, procurava-se manter constante o enchimento do rotor. Obtidas vazões do produto e do rejeito iguais à metade da vazão de alimentação, a centrífuga era operada com estas vazões durante um período de pelo menos 30 min antes de realizar-se a análise isotópica, a fim de permitir o estabelecimento das concentrações de equilíbrio. No decorrer deste tempo de equilíbrio, eram medidas as pressões da alimentação, do rejeito e do produto, assim como a pressão axial no rotor.

Atingido o tempo de equilíbrio, era realizado, sucessivamente, o transporte do gás de alimentação, do produto e do rejeito ao sistema de admissão do espectrômetro de massas. A seguir, efetuava-se a análise isotópica destas amostras, segundo um dos procedimentos descritos no Capítulo III. Nestas análises eram determinadas, através das alturas dos picos dos íons de $^{235}UF_5^+$ e $^{238}UF_5^+$, as relações de abundância do gás de alimentação (de composição isotópica natural), do produto e do rejeito, que designaremos por $R = (^{235}U/^{238}U)_P$, $R' = (^{235}U/^{238}U)_P$ e $R'' = (^{235}U/^{238}U)_R$, respectivamente. De acordo com as definições (1), (2) e (3) do Capítulo I, os fatores de separação parciais do produto e do rejeito são então dados por:

$$\alpha = (^{235}U/^{238}U)_P \times (^{238}U/^{235}U)_O \quad (96)$$

$$\beta = (^{238}U/^{235}U)_R \times (^{235}U/^{238}U)_O \quad (97)$$

enquanto que o fator de separação total é calculado por:

$$A = \alpha \beta = (^{235}U/^{238}U)_P \times (^{238}U/^{235}U)_R \quad (98)$$

Geralmente, eram realizadas pelo menos 5 medidas de relação de abundância para cada uma das amostras analisadas, de modo que os valores experimentais de α , β e A correspondam à média destas determinações de espectrometria de massas.

3. EXPERIÊNCIAS PRELIMINARES

As experiências preliminares foram levadas a efeito com a finalidade de verificar o funcionamento da centrífuga com a passagem de hexafluoreto de urânio, operar o sistema de introdução e retirada de gás com pequenas vazões e pressões de hexafluoreto de urânio e estudar a execução da análise isotópica do produto e do rejeito da separação. Neste sentido foram realizadas duas experiências designadas por experiências nº 1 e nº 2, respectivamente.

Na primeira destas experiências, foi investigada a possibilidade de realizar a análise isotópica mediante a introdução direta do gás na fonte iônica do espectrômetro de massas. Para isto, encontrando-se a centrífuga em regime de plena carga com as temperaturas estabilizadas, o sistema de introdução e retirada de gás foi operado com o UF₆ dentro das condições que seriam empregadas nas experiências de separação. O gás, com vazões de alimentação compreendidas entre 0,002 e 0,003 g/min em pressões correspondentes de 0,05 a 0,18 Torr, foi transportado diretamente deste sistema ao sistema de admissão do espectrômetro sem passar através da centrífuga. Foi constatado então que, dentro do intervalo de pressões indicado, não era possível obter o registro dos picos UF₅. Aumentada a pressão da alimentação para 0,3 Torr, verificou-se a presença destes picos, porém sua altura era demasiadamente pequena para a realização da análise isotópica. Por este motivo, a centrífuga foi desligada e a experiência não foi continuada. Em vista da insuficiência das pressões para fornecer alturas de picos convenientes, foi instalado então no sistema de admissão do espectrômetro o pequeno "trap", mencionado no Capítulo III, destinado a condensar o UF₆ na temperatura de nitrogênio líquido.

Na experiência nº 2 foi estabelecido o procedimento descrito na Secção anterior. Nesta experiência, encontrando-se a centrífuga nas condições de operação indicadas na Tabela IV, o enchimento do rotor foi realizado segundo este procedimento durante 52 min, com vazões compreendidas entre 0,012 e 0,086 g/min e pressões de alimentação compreendidas, respectivamente, entre 0,1 e 0,7 Torr. A quantidade de gás presente no rotor foi estimada em 0,45 g, depois de descontada a massa do gás existente nos tubos de ligação e nos labirintos. A pressão axial do rotor, que corresponde a esta quantidade de gás, era igual a 0,35 Torr. Ajustadas as vazões de modo a se obter o processo de separação simétrico, a vazão de alimentação medida apresentou o valor de 0,007 g/min. As pressões da alimentação, do produto e do rejeito, medidas com o escoamento de gas, foram iguais a 0,30, 0,15 e 0,05 Torr, respectivamente. A análise isotópica do rejeito e do produto foi realizada, condensando-se o UF₆ no pequeno "trap" do sistema de admissão do espectrômetro durante cerca de 15 min. O material condensado foi, a seguir, sublimado para o interior da fonte iônica do espectrômetro. As medidas da relação de abundância forneceram para o rejeito (²³⁸U/²³⁵U)_R = 1,215 e para o produto (²³⁵U/²³⁸U)_P = 0,859. Nestas condições, o fator de separação total obtido nesta experiência com a vazão de alimentação de 0,007 g/min e para a diferença de temperatura entre as tampas do rotor de 14,4°C, indicada na Figura 21, é igual a:

$$A = \alpha \beta = (\text{²³⁵U}/\text{²³⁸U})_P \times (\text{²³⁸U}/\text{²³⁵U})_R = 1,05$$

No decorrer da experiência nº 2 não foi possível realizar outras análises isotópicas em virtude das oscilações que começaram a ser observadas na altura dos picos registrados. Por este motivo, a experiência não foi continuada e a fonte iônica, após a realização da experiência, foi submetida à limpeza mencionada no Capítulo III.

Quanto à centrífuga, seu comportamento foi plenamente satisfatório durante o período de funcionamento de 12 horas, nada de anormal tendo sido registrado no decorrer das 7 horas de passagem contínua de UF₆ através do rotor. Desmontados os labirintos após a realização da experiência, foi constatado apenas o ataque do UF₆ nos anéis de vedação, não tendo ocorrido nenhuma modificação no óleo presente no circuito de lubrificação.

4. EXPERIÊNCIAS DE ENRIQUECIMENTO ESTÁTICO

Nas experiências de enriquecimento estático foi estudada a dependência que existe entre o fator de separação total e a diferença de temperatura entre as tampas do rotor, quando a separação dos isótopos de urânio é realizada em condições de equilíbrio, com uma dada quantidade de gás presente no rotor. Nestas experiências foram utilizadas vazões muito pequenas de hexafluoreto de urânio, de modo que a centrífuga operou praticamente em condições de refluxo total.

Foram efetuadas duas experiências de centrifugação, designadas por experiências nºs 3 e 4, para estudar o enriquecimento estático. Durante a realização da primeira destas experiências, ajustadas as vazões de UF₆ através do rotor, ocorreu um defeito no funcionamento do termostato, que mantém a constância da temperatura do rotor. Devido à elevação da temperatura da água de aquecimento até 70°C, decorrente deste defeito, o acionamento da centrífuga foi desligado, não tendo sido possível dar prosseguimento à experiência prevista.

A experiência nº 4, que permitiu a investigação completa do enriquecimento estático, foi iniciada com a diferença de temperatura entre as tampas do rotor de 13,3°C, obtida sem o aquecimento da tampa superior por correntes de Foucoul. Após o estabelecimento desta diferença de temperatura, o enchimento do rotor foi efetuado durante 39 min com vazões de alimentação compreendidas entre 0,01 e 0,102 g/min nas pressões de alimentação compreendidas entre 0,3 e 0,95 Torr. A quantidade de UF₆ assim introduzida no rotor foi igual a 2,6 g. Mantida esta quantidade de gás, a vazão de alimentação foi ajustada em 0,003 g/min, de modo a obter-se o processo de separação simétrico com a retirada da centrífuga de vazões do produto e do rejeito iguais a 0,0015 g/min. Estas vazões foram consideradas suficientemente pequenas para a operação da centrífuga em condições de refluxo total. Com o uso destas vazões, a diferença de temperatura entre as tampas do rotor foi variada de 13,3°C até 23,4°C por meio da variação da corrente elétrica, que produz as correntes de Foucoul na tampa superior do rotor, mantendo-se constante a temperatura da tampa inferior. A Figura 23 apresenta a variação das temperaturas das tampas do rotor em função do tempo a partir do instante em que foi iniciado o aquecimento forçado da tampa superior. Os valores da corrente elétrica I, que determina o aquecimento da tampa superior, e os valores da diferença entre a temperatura da tampa superior T_s e a temperatura da tampa inferior T_i, $\Delta T = T_s - T_i$, que correspondem aos diversos patamares da Figura 23, se encontram na Tabela V.

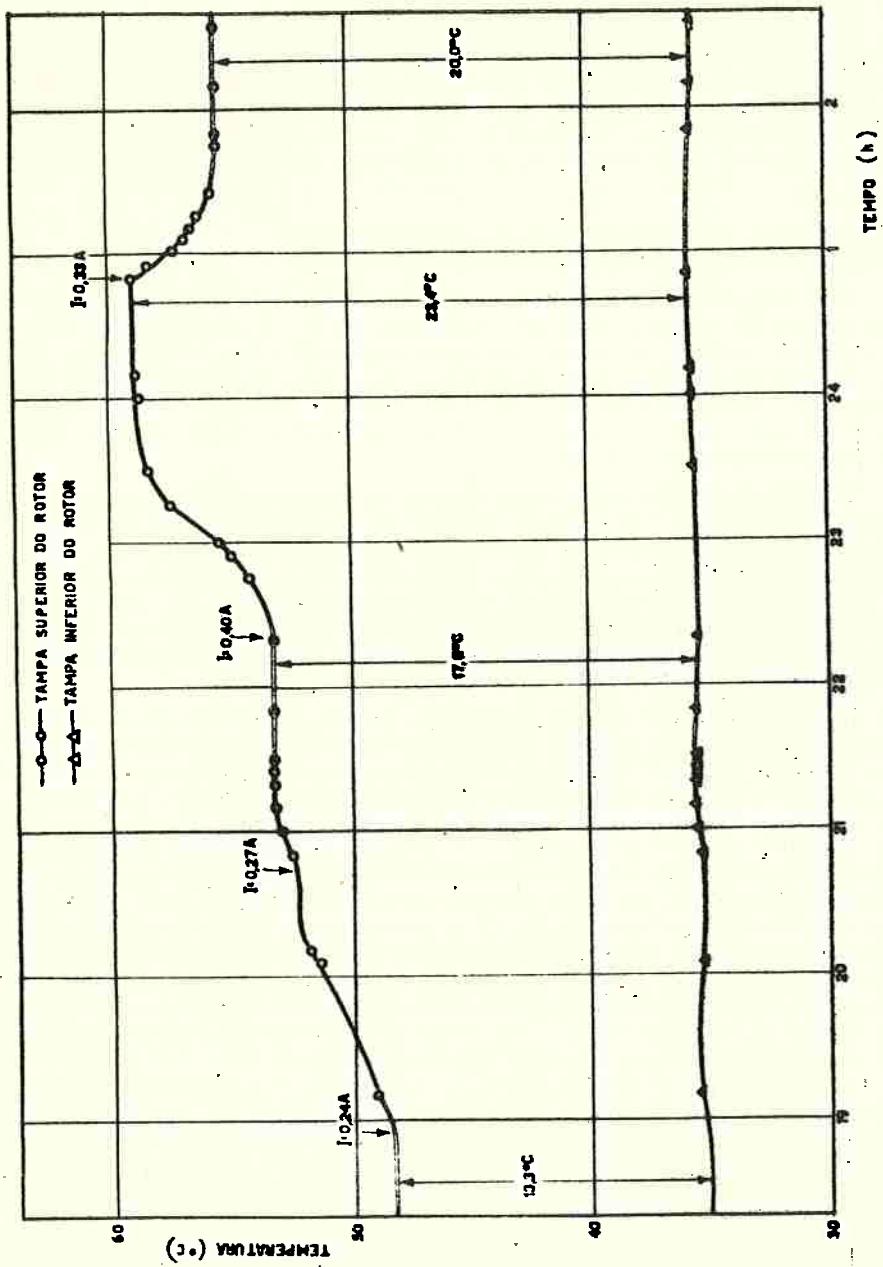


TABELA V

TEMPERATURAS DAS TAMPAS DO ROTOR DA CENTRÍFUGA

EXPERIÊNCIA N° 4

<u>I</u> (A)	<u>T_s</u> (°C)	<u>T_i</u> (°C)	<u>Δ T = (T_s - T_i)</u> (°C)
0	48,3	35,0	13,3
0,24 - 0,27	53,2	35,4	17,8
0,33	55,5	35,5	20,0
0,40	59,0	35,6	23,4

As análises isotópicas do produto e do rejeito, retirados da centrífuga após o estabelecimento de cada uma das diferenças de temperatura indicadas na Tabela V, foram realizadas mediante a condensação e sublimação do UF₆, coletado no pequeno "trap" do sistema de admissão do espectrômetro de massas. Os resultados obtidos nestas análises e os fatores de separação total, calculados a partir destes resultados, que correspondem às diversas diferenças de temperatura ΔT usadas, são apresentados na Tabela VI.

TABELA VI

ENRIQUECIMENTO EM CONDIÇÕES DE REFLUXO TOTAL

<u>Δ T</u> (°C)	<u>(²³⁵U/²³⁸U)_P</u> x 100	<u>(²³⁸U/²³⁵U)_R</u> x 0,01	<u>A = (²³⁵U/²³⁸U)_P(²³⁸U/²³⁵U)_R</u>
13,3	0,859	1,179	1,013
17,8	0,876	1,303	1,141
20,0	0,894	1,329	1,188
23,4	0,839	1,214	1,019

Durante a realização desta experiência, a centrífuga funcionou ininterruptamente durante 16 h 50 min e, dentro deste intervalo de tempo, o hexafluoreto de urânio passou através do rotor durante 13 h sem a ocorrência de qualquer anomalia no comportamento da centrífuga. O funcionamento da fonte iônica foi também plenamente satisfatório. Todavia não foi possível realizar um número maior de análises isotópicas para outras diferenças de temperatura entre as tampas do rotor, devido à impurificação progressiva do pequeno "trap" de condensação do UF₆. As impurezas provenientes da ação do UF₆ com os anéis de vedação e os vapores de óleo dos labirintos da centrífuga, também condensavam neste "trap" e reagiam quantitativamente com o hexafluoreto, quando o "trap" era degelado, de modo a não permitir mais a obtenção dos picos de UF₅ no registro do espectro de massas.

5. EXPERIÊNCIAS DE ENRIQUECIMENTO DINÂMICO

Nas experiências de enriquecimento dinâmico, o fator de separação total foi investigado em condições de produção da centrífuga, isto é, em função da vazão de hexafluoreto de urânio que atravessa o rotor, mantendo-se então constante a diferença de temperatura entre as tampas do rotor. Neste sentido foram realizadas seis experiências de centrifugação, das quais apenas duas, a saber, as experiências nos. 8 e 11 conduziram a resultados satisfatórios. Nas outras experiências ocorreram diversas falhas no funcionamento do equipamento, tais como, o encosto acentuado do eixo superior da centrífuga nos anéis de vedação (experiência nº 5), o funcionamento defeituoso da bomba hidráulica que promove a circulação da água de resfriamento (experiência nº 6) e a operação insatisfatória da fonte iônica do espetrômetro (experiências nos. 7 e 9). Estas falhas obrigaram a paralisação do movimento da centrífuga, não permitindo, portanto, a realização ou a conclusão da experiência de separação prevista.

A experiência nº 8 foi levada a efeito utilizando a diferença de temperatura entre as tampas do rotor de 18,3°C, obtida com a corrente de aquecimento da tampa superior de 0,3 A. O rotor foi inicialmente enchedido com 6,5 g de UF₆ durante 1 h 04 min, por meio de vazões de alimentação compreendidas entre 0,08 e 0,12 g/min, às quais correspondiam pressões de alimentação compreendidas entre 0,9 e 1,2 Torr. Mais tarde o enchimento do rotor foi aumentado, a fim de elevar a pressão axial necessária à retirada de maiores vazões do produto e do rejeito. Mantida a diferença da temperatura entre as tampas do rotor em 18,3 °C, a experiência foi realizada com o emprego de quatro vazões de alimentação, compreendidas no intervalo de 0,010 a 0,100 g/min. Cada uma destas vazões foi ajustada de modo a obter-se o processo de separação simétrico. A Tabela VII apresenta os valores das vazões de alimentação L, do produto L' e do rejeito L'', assim como os valores da pressão axial p₀ e das pressões da alimentação p, do produto p' e do rejeito p'', medidos durante a realização desta experiência. As duas primeiras vazões da Tabela VII foram obtidas com o primeiro enchimento do rotor por meio da manipulação conveniente das válvulas ligadas aos respectivos medidores. As outras vazões foram estabelecidas mediante o aumento da pressão axial decorrente da introdução de quantidades crescentes de UF₆ no interior do rotor. Para a pressão axial de cerca de 1 Torr não foi possível operar a centrífuga com vazões de alimentação superiores a 0,100 g/min, em virtude da grande resistência oferecida ao escoamento do gás pelos eixos tubulares, relativamente finos, da centrífuga.

TABELA VII
VAZÕES E PRESSÕES DE UF₆ UTILIZADAS
EXPERIÊNCIA N° 8

<u>Medida</u>	<u>L</u>	<u>L'</u>	<u>L''</u>	<u>P</u>	<u>P'</u>	<u>P''</u>	<u>P_o</u>
nº	(g/min)	(g/min)	(g/min)	(Torr)	(Torr)	(Torr)	(Torr)
1	0,010	0,006	0,004	0,44	0,24	0,17	0,35
2	0,029	0,015	0,014	0,70	0,36	0,17	0,55
3	0,074	0,037	0,036	1,13	0,65	0,32	0,85
4	0,100	0,050	0,048	1,37	0,82	0,37	1,04

Depois de estabelecidas cada uma das vazões gasosas indicadas na Tabela VII foi efetuada a análise isotópica do produto e do rejeito da separação, segundo o procedimento da condensação e sublimação do UF₆, coletado no pequeno "trap" do sistema de admissão de gás do espectrômetro. Os resultados obtidos nessas análises para as diversas vazões de alimentação L utilizadas e os fatores de separação correspondentes são apresentados na Tabela VIII. Os valores dos fatores de separação α e S desta tabela foram calculados a partir da relação de abundância do gás de composição isotópica natural, determinada no início da realização da experiência de separação de isótopos.

TABELA VIII
ENRIQUECIMENTO EM CONDIÇÕES DE PRODUÇÃO
EXPERIÊNCIA N° 8

<u>Medida</u>	<u>L</u>	<u>(²³⁵U/²³⁸U)_P</u>	<u>α</u>	<u>(²³⁸U/²³⁵U)_R</u>	<u>β</u>	<u>A</u>
nº	(g/min)	x 100		x 0,01		
1	0,010	0,824	1,096	1,387	1,043	1,143
2	0,029	0,808	1,075	1,384	1,041	1,118
3	0,074	0,771	1,025	1,378	1,036	1,062
4	0,100	0,753	1,002	1,373	1,032	1,034

No decorrer da experiência n° 8, a centrífuga funcionou ininterruptamente durante 12 horas e, dentro deste período, o tempo de passagem de UF₆ através do rotor foi igual a 8 h 50 min. O funcionamento da

centrífuga e o da fonte iônica do espectrômetro de massas foram plenamente satisfatórios. Desmontados os labirintos após a realização da experiência, foi constatada a presença de uma camada relativamente espessa de grafite ao redor dos eixos na região dos anéis de vedação, a qual se formou durante a ação do UF_6 com o material destes anéis. Os labirintos, especialmente o inferior, apresentaram também depósitos provenientes da reação da reação do UF_6 com este material e com os vapores de óleo. Ambos os labirintos foram então submetidos a uma cuidadosa limpeza com tri-cloro-etileno e a camada presente nos eixos foi removida com auxílio de uma lixa de granulação fina. A seguir, centrados os eixos de modo a apresentarem uma exentricidade inferior a 0,010 mm, os labirintos foram novamente instalados na centrífuga.

A experiência nº 11 foi realizada com a diferença de temperatura entre as tampas do rotor de $19,5 \pm 0,3^\circ C$, obtida mediante o aquecimento da tampa superior por meio da circulação de uma corrente de 0,38 A. Nesta experiência, depois de evacuado a $1,5 \times 10^{-3}$ Torr, o rotor foi inicialmente submetido a duas lavagens sucessivas com o hexafluoreto de urânio. Em cada uma destas lavagens foi introduzida no interior do rotor uma quantidade de gás de cerca de 1,0 g com a vazão de alimentação de 0,1 g/min sob pressão de 1,0 Torr. A seguir, encontrando-se o rotor de novo em vácuo ($1,5 \times 10^{-3}$ Torr), foi efetuado seu enchimento durante 51 min, com vazões de alimentação compreendidas entre 0,12 e 0,20 g/min, as quais correspondiam pressões de alimentação compreendidas entre 1,0 e 1,5 Torr. A quantidade de gás introduzido desta maneira no interior do rotor foi igual a 8,6 g. Mantida a diferença de temperatura entre as tampas do rotor em $19,5^\circ C$, foram empregadas quatro vazões de alimentação compreendidas no intervalo de 0,020 e 0,080 g/min. Para cada uma destas vazões, as vazões do produto e do rejeito foram ajustadas, de modo a obter-se o processo de separação simétrico. As vazões de alimentação L, do produto L' e do rejeito L'', empregadas nesta experiência nas respectivas pressões p, p' e p'', são apresentadas na Tabela IX.

TABELA IX
VAZÕES E PRESSÕES DE UF_6 UTILIZADAS
EXPERIÊNCIA N° 11

<u>Medida</u>	<u>L</u> (g/min)	<u>L'</u> (g/min)	<u>L''</u> (g/min)	<u>p</u> (Torr)	<u>p'</u> (Torr)	<u>p''</u> (Torr)
1	0,058	0,029	0,028	1,02	0,50	0,28
2	0,080	0,038	0,039	1,22	0,63	0,36
3	0,044	0,022	0,023	0,98	0,56	0,55
4	0,020	0,010	0,010	0,87	0,62	0,72

Na primeira das medidas indicadas na Tabela IX, a vazão de alimentação foi ajustada, de modo a manter-se o enchimento do rotor acima

mencionado. A medida seguinte foi obtida aumentando-se a pressão de alimentação e, portanto, o enchimento do rotor. Nas terceira medida, foi retirado UF₆ do rotor, a fim de tornar possível a diminuição da pressão de alimentação e consequentemente, a vazão de alimentação. Na ultima medida, foi mantido o enchimento do rotor correspondente ao da medida anterior, porém a vazão de alimentação foi diminuída. Para ajustar as vazões do produto e do rejeito ao valor desejado, foi então necessário fechar as válvulas situadas na saída dos respectivos medidores da vazão, razão pela qual ocorreu o aumento das pressões do produto e do rejeito indicado na Tabela IX.

Após o ajuste de cada uma das vazões da Tabela IX, foi realizada a análise isotópica do gás de alimentação (composição isotópica natural), do produto e do rejeito, transportando o gás ao sistema de admissão do espectrômetro de massas e introduzindo-o diretamente na fonte iônica após a redução conveniente de sua pressão. Nestas análises não foi utilizado, portanto, o procedimento da condensação e sublimação de UF₆ no pequeno "trap" do sistema de admissão, pois já havia sido feita a instalação da membrana de cobre com o orifício maior, mencionada no Capítulo III. Os resultados obtidos nestas análises para as diversas vazões de alimentação L usadas se encontram na Tabela X. Os valores dos fatores de separação parciais α e β apresentados nesta Tabela foram calculados com auxílio da média de quatro medidas da relação de abundância, realizadas com o gás de composição isotópica natural, que foi igual a $(^{238}\text{U}/^{235}\text{U})_0 = 138,7$.

TABELA X
ENRIQUECIMENTO EM CONDIÇÕES DE PRODUÇÃO

EXPERIÊNCIA N° 11

<u>Medida</u>	<u>L</u>	<u>$(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})_P \times 100$</u>	<u>α</u>	<u>$(^{238}\text{U}/^{235}\text{U})_R \times 0,01$</u>	<u>β</u>	<u>A</u>
nº	(g/min)					
4	0,020	0,823	1,140	1,431	1,032	1,179
3	0,044	0,812	1,126	1,428	1,030	1,160
1	0,058	0,791	1,097	1,422	1,025	1,125
2	0,080	0,757	1,050	1,413	1,019	1,070

Durante a realização da experiência n° 11, o tempo total do funcionamento da centrífuga foi igual a 16 h 55 min e o tempo de passagem de UF₆ através do rotor, igual a 14 h 35 min. Durante estes períodos, a centrifuga apresentou um funcionamento mecânico plenamente satisfatório. Desmontados os labirintos, verificou-se que os anéis de vedação haviam sido bastante atacados pelo hexafluoreto de urânio, os produtos desta reação tendo formado um depósito espesso ao redor dos eixos e obturado em grande parte os orifícios de saída do gás de rejeito. As paredes internas

dos labirintos também mostraram a presença destes produtos de decomposição. Em particular, a reação do UF₆ com o material dos anéis de vedação e os vapores de óleo foi bastante intensa no labirinto inferior, pois constatou-se a formação de uma camada bastante espessa na tampa deste labirinto que recebe o jato do produto, quando este sai do eixo tubular inferior. Em virtude desta reação, que ocorreu quantitativamente em vazões pequenas, não foi possível registrar os picos de UF₅ no produto quando as vazões deste eram vazões inferiores a 0,020 g/min.

CAPÍTULO V

DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÕES

Neste Capítulo os resultados experimentais obtidos serão discutidos com auxílio da teoria apresentada no Capítulo I. A discussão dos resultados fornecidos pelas experiências de enriquecimento estático visa investigar a grandeza e o perfil de escoamento da contracorrente no interior do rotor, enquanto que a análise dos resultados provenientes das experiências de enriquecimento dinâmico tem por finalidade esclarecer os aspectos peculiares da separação dos isótopos de urânio observados na operação da centrífuga em condições de produção.

1. SEPARAÇÃO DOS ISÓTOPOS DE URÂNIO EM REFLUXO TOTAL

A teoria da centrífuga contracorrente desenvolvida no Capítulo I mostra que em refluxo total existe um valor L_0 da grandeza da contracorrente no interior do rotor que conduz ao máximo enriquecimento. Na centrífuga de contracorrente estabelecida por convecção térmica, a diferença de temperatura entre as tampas do rotor, $\Delta T = T_s - T_i$, constitui uma medida da grandeza e do sentido da corrente de circulação do gás no interior do rotor. Nestas condições, deve existir uma diferença de temperatura (ΔT)₀ que determina o máximo enriquecimento fornecido pela centrífuga.

A experiência de separação de isótopos de urânio, realizada em condições de refluxo total (experiência nº 4), confirma esta previsão teórica. De fato, no gráfico da Figura 24, traçado com os valores do fator de separação total A e os da diferença de temperatura entre as tampas do rotor ΔT indicados na Tabela VI, mostra que o fator de separação aumenta com o aumento de ΔT , atravessa um máximo na diferença de temperatura óptima (ΔT)₀, correspondente à corrente de circulação óptima no interior do rotor e, a seguir, diminui com um posterior aumento de ΔT . Das medidas de A , verifica-se, ainda, que o gás escoa ao longo da parede do rotor no sentido da tampa fria para a tampa quente e em sentido contrário na região axial, pois a mistura se enriquece do isótopo pesado na tampa quente e do isótopo leve na tampa fria. Em concordância com as experiências de separação anteriormente realizadas por nós com a mesma centrífuga (48), a contracorrente gasosa no interior do rotor apresenta uma grande estabilidade, pois o segundo ponto do gráfico da Figura 24 corresponde aos dados obtidos numa experiência completamente independente, a saber, a experiência nº 2.

O valor máximo do fator de separação total $A_{0,exp}$, extraído do gráfico da Figura 24, é igual a 1,195 e este fator é obtido para a diferença de temperatura óptima de $20,5 \pm 0,5^{\circ}\text{C}$. Admitindo que o processo de separação realizado mediante o ajuste das vazões para o corte $\theta = 0,5$ seja realmente simétrico, resulta das considerações feitas no Capítulo I, que

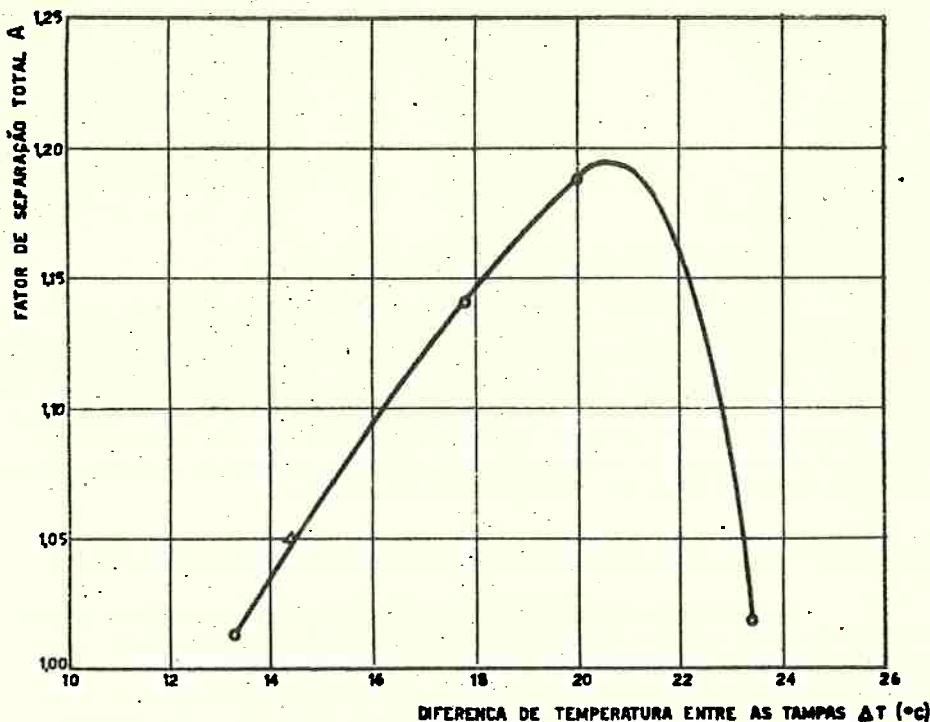


Figura 24 - Gráfico do fator de separação total em função da diferença de temperatura entre as tampas do rotor

$\alpha = \beta = \sqrt{A_0, \exp} = 1,093$. Nestas condições, de acordo com a definição do fator de enriquecimento (equação 4), o enriquecimento máximo da mistura no isótopo ^{235}U , que se obtém em refluxo total, é de 9,3%.

Nas condições de operação da centrífuga, dadas pela velocidade periférica $\omega r_2 = 299,7 \text{ m/s}$ e temperatura do rotor $T = 45 + 273 = 318 \text{ }^{\circ}\text{K}$, o fator de separação do processo simples no equilíbrio ou simplesmente o fator de separação radial, definido pela equação (46) apresenta o valor $\alpha_0 = 1,052$. Definindo-se, agora, o fator de multiplicação k por

$$k = \ln A_0 / \ln \alpha_0 \quad (99)$$

obtem-se, para $A_0 = A_0, \exp = 1,195$, o valor de $k = 3,50$. Este valor é praticamente igual ao quociente entre o comprimento interno do rotor Z e o diâmetro interno do rotor $2r_2$, $Z/2r_2 = 3,59$. Esta concordância prevista pela teoria da centrífuga contracorrente elaborada com grandes simplificações por MARTIN e KUHN (10), foi também constatada por GROTH e colaboradores (11) nas experiências de separação de isótopos realizada com a centrífuga, modelo UZIIIB. Nestas condições, para fins práticos, conhecidas as dimensões internas e a velocidade periférica do rotor, o enriquecimento máximo fornecido em refluxo total por uma centrífuga a gás de contracorrente estabelecida termicamente, o qual corresponde à corrente de convecção ótima, pode ser calculado por:



$$\ln A_o = \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \frac{Z}{2r_2} \quad (100)$$

ou por:

$$A_o = \exp \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)}{2RT} \frac{Z}{2r_2} \quad (101)$$

No presente caso, o valor de $A_{o,ot}$, calculado pela equação (101) seria igual a 1,201, ao qual corresponderia, para o processo de separação simétrico, o fator de separação parcial $\alpha = \sqrt{A_{o,ot}} = 1,096$, ou seja, o enriquecimento de 9,6%.

O perfil de escoamento da contracorrente no interior do rotor pode ser agora investigado mediante a comparação entre o valor de A_o obtido experimentalmente e os valores de A_o calculados a partir da equação

$$A_o = \exp \frac{(M_2 - M_1)(\omega r_2)^2}{2RT} \frac{Z}{2r_2} \sqrt{2} \sqrt{K} \quad (102)$$

resultante das equações (70) e (80), na qual K é o coeficiente do perfil de escoamento. Para o perfil de escoamento ótimo, que conduz ao potencial de separação máximo, $K = 1$ e neste caso o fator de separação ótimo obtido em condições de refluxo total seria igual a $A_{o,ot} = 1,295$. Para o perfil de escoamento de Martin, o valor de K pode ser obtido da curva de K em função de $M\omega^2 r_2^2 / 4RT$, apresentada por KANAGAWA, OYAMA e TA KASHIMA (34). Nas experiências por nós realizadas com $\omega r_2 = 299,7 \text{ m/s}$, $T = 318^\circ \text{K}$ e $M = 352$, $M\omega^2 r_2^2 / 4RT = 2,99$. Para este valor, o gráfico em questão fornece $K = 0,88$. Introduzido este valor na equação (102), o fator de separação em refluxo total para o perfil de Martin é $A_{o,M} = 1,275$.

A fim de discutir estes valores de A_o , convém compará-los com os valores obtidos por GROTH e colaboradores (11) para UF₆ com a centrífuga UZIIIB, a qual, do ponto de vista mecânico, não difere muito da centrífuga ZG3. Esta comparação é feita por meio da Tabela XI, na qual são apresentados os valores da velocidade periférica ωr_2 , da temperatura do rotor T , do fator de multiplicação k , da relação $Z/2r_2$ e dos fatores de separação $A_{o,exp}$, $A_{o,ot}$ e $A_{o,M}$, sendo $A_{o,M}$ o fator de separação calculado a partir da equação (101).

A análise dos dados apresentados na Tabela XI revela que o valor do fator de separação obtido na presente investigação $A_{o,exp}$ com a velocidade periférica de 300 m/s é menor do que o valor correspondente obtido com a centrífuga UZIIIB operando com a velocidade periférica de 280 m/s. Este menor valor de $A_{o,exp}$ provém do fato do rotor da centrífuga ZG3 apresentar uma relação comprimento/diâmetro, menos favorável do que a da centrífuga UZIIIB.

Quanto aos fatores de separação totais $A_{o,ot}$ e $A_{o,M}$, a Tabela mostra que estes fatores são aproximadamente iguais para a velocidade periférica de 252 m/s, e que a diferença entre estes fatores aumenta a

TABELA XI
ENRIQUECIMENTO DE ^{235}U EM REFLUXO TOTAL

<u>Centrífuga</u>	<u>ωr_2</u>	<u>T</u>	<u>α_o</u>	<u>k</u>	<u>$Z/2r_2$</u>	<u>A_o, exp</u>	<u>$A_o(\text{MK})$</u>	<u>A_o, ot</u>	<u>A_o, M</u>
(Modelo)	(m/s)	(°K)							
UZIIIIB	252	310	1,038	4,65	4,74	1,188	1,191	1,281	1,273
UZIIIIB	280	310	1,047	4,45	4,74	1,225	1,242	1,358	1,339
ZG3	300	318	1,052	3,50	3,59	1,195	1,201	1,295	1,275

medida que a velocidade aumenta. Como já mencionamos no Capítulo I, este comportamento ocorre porque na velocidade de 252 m/s os perfis de escoamento ótimo e de Martin são praticamente coincidentes, enquanto que sua divergência aumenta à medida que a velocidade periférica aumenta. O perfil de escoamento de Martin determina que a superfície cilíndrica da contracorrente com $w = 0$ se encontre próxima da parede do rotor e tanto mais próxima quanto mais pesada for a mistura isotópica e quanto maior for a velocidade periférica. Resulta então que, para o UF_6 , a espessura da corrente gasosa, que escoa ao longo da parede do rotor não é maior do que um milímetro, como observaram LOS e KISTEMAKER (38). Esta condição é a que deve ser satisfeita para o perfil de escoamento ótimo. A diferença que existe, então, entre este perfil e o do Martin ocorre na região axial do rotor, como mostra o trabalho de LOS e KISTEMAKER. Para velocidades periféricas de 250 m/s, esta diferença é muito pequena, razão pelas quais os dois perfis são então praticamente iguais.

Comparando-se agora os valores dos fatores de separação obtidos experimentalmente com os calculados para o perfil de escoamento de Martin e o ótimo verifica-se que na centrífuga UZIIIIB, $A_o, \text{exp} = 0,933A_o, M = 0,927A_o, \text{ot}$ quando sua velocidade periférica é 252 m/s. Neste caso, o valor de A_o medido é portanto igual a 93% do valor de A_o correspondente a ambos os perfis de escoamento considerados. Para a centrífuga ZG3, operando com a velocidade periférica de 300 m/s, dos dados colhidos na presente investigação, segue-se que $A_o, \text{exp} = 0,937A_o, M = 0,923A_o, \text{ot}$. Estes resultados mostram que com o aumento da velocidade periférica, o perfil de escoamento real no interior do rotor se afasta mais do perfil ótimo do que do de Martin. Todavia, este afastamento não é muito acentuado para a velocidade periférica de 300 m/s, pois neste caso, o fator de separação medido é ainda igual a 92% do fator de separação correspondente ao perfil de escoamento ótimo, o qual, por sua vez, é o fator de separação máximo teórico. Por outro lado, este pequeno afastamento do perfil de escoamento ótimo é suficiente para reduzir o comprimento efetivo do rotor, pois da comparação entre $\ln A_o, \text{exp}$ e $\ln A_o, \text{ot}$ resulta que, para ambas as centrífugas, bastariam cerca de 70% do comprimento do rotor para realizar a mesma separação de isótopos, caso as centrífugas realmente operassem dentro das condições do perfil de escoamento ótimo da contracorrente gasosa no interior do rotor.

2. SEPARAÇÃO DOS ISÓTOPOS DE URÂNIO EM CONDIÇÕES DE PRODUÇÃO

Quando uma centrífuga contracorrente opera em condições de produção, da teoria apresentada no Capítulo I, segue-se que o enriquecimento é dado em função da vazão do produto pela equação (66). Lembrando que $P = \theta L$, onde θ é o corte e L a vazão de alimentação, esta equação pode ser posta na forma:

$$\frac{N(Z)}{N(0)} = \frac{(1 + \theta L/c_1) \exp(2\varepsilon Z)^{(1 + \theta L/c_1)}}{1 + (\theta L/c_1) \exp(2\varepsilon Z)^{(1 + \theta L/c_1)}} \quad (103)$$

na qual $2\varepsilon = c_1/c_5$, sendo c_1 e c_5 as constantes definidas pela equação (65). Em refluxo total ($P = 0$), temos:

$$\left[\frac{N(Z)}{N(0)} \right]_0 = \exp 2\varepsilon Z$$

de modo que a equação (103) se torna:

$$\frac{N(Z)}{N(0)} = \frac{(1 + \theta L/c_1) \left[\frac{N(Z)}{N(0)} \right]_0^{(1 + \theta L/c_1)}}{1 + (\theta L/c_1) \left[\frac{N(Z)}{N(0)} \right]_0} \quad (104)$$

A equação (104) exprime agora a relação entre o enriquecimento e a vazão de alimentação em termos da constante c_1 e do enriquecimento em refluxo total $[N(Z)/N(0)]_0$. Conhecidas estas grandezas e fixado o corte ε , esta equação permite o cálculo do enriquecimento para vazões de alimentação dadas. As constantes c_1 e $[N(Z)/N(0)]_0$, como já foi mencionado, dependem da vazão e do perfil de escoamento da contracorrente no interior do rotor. Como para a centrífuga de contracorrente estabelecida térmicamente estas quantidades não são conhecidas, é necessário recorrer à experiência para investigar a dependência entre o enriquecimento e a vazão de alimentação.

Os dados do enriquecimento obtidos na presente investigação para diversas vazões de alimentação nas diferenças de temperatura entre as tampas do rotor de 18,3°C e 19,5°C são apresentadas nas Tabelas VIII e X, respectivamente. Estes dados correspondem a um intervalo de vazões de alimentação compreendido entre 0,010 e 0,100 g/min. Como já foi mencionado, o ajuste das vazões para a obtenção do processo de separação simétrico não permitiu a utilização de vazões de alimentação superiores a 0,1 g/min, em virtude das grandes resistências de escoamento oferecidas pelos eixos tubulares da centrífuga. Assim, admitindo o regime de escoamento laminar, para o gás que escoa através do tubo interno do eixo superior e do eixo tubular inferior, a resistência de escoamento é dada, segundo a equação de Poiseuille por:

$$W = \frac{P_2^2 - P_1^2}{L} = \frac{16 \eta l RT}{\pi r^4} \quad (105)$$

onde P_1 e P_2 são as pressões nas extremidades do tubo, L é a vazão que escoa através do tubo, η é a viscosidade do gás, l é o comprimento e r é o raio interno do tubo. Para o gás que atravessa o canal formado pelos dois tubos concêntricos do eixo superior, da equação de Poiseuille vem:

$$W = \frac{P_2^2 - P_1^2}{L} = \frac{16 \eta l RT}{\pi [(r_2^4 - r_1^4) - (r_2^2 - r_1^2)^2 / \ln(r_2/r_1)]} \quad (106)$$

sendo r_2 o raio interno do tubo externo e r_1 o raio externo do tubo interno. Considerando que a viscosidade do vapor de UF₆ é $2,35 \times 10^{-4}$ g/cm/s (53), segue-se destas equações que, na temperatura de 300°K, as resistências de escoamento no tubo interno do eixo superior ($r = 0,3$ cm e $l = 60$ cm, no eixo tubular inferior ($r = 0,3$ cm e $l = 46$ cm) e na região compreendida entre os dois tubos concêntricos do eixo superior ($r_2 = 0,5$ cm, $r_1 = 0,35$ cm e $l = 55$ cm) são iguais a 5,90 (Torr)² min/g, 4,52 (Torr)² min/g e 22,9 (Torr)² min/g, respectivamente. Para o cálculo da vazão de alimentação máxima compatível com o processo de separação simétrico, é necessário considerar a maior destas resistências de escoamento, que é a da região compreendida entre os dois tubos concêntricos do eixo superior a través do qual escoa o rejeito. Designando então por p_0 a pressão axial (na entrada do eixo superior), por p'' a pressão do rejeito (na saída do eixo superior) e por L'' a vazão de rejeito, obtém-se da equação (106):

$$p_0^2 - p''^2 = 22,9 L \quad (107)$$

Para a máxima pressão axial de 1,04 Torr, utilizada na presente investigação, a maior vazão do rejeito que pode escoar através da região considerada é obtida quando $p'' \rightarrow 0$. Da equação (107), segue-se que esta vazão é igual a 0,047 g/min. A fim de manter a simetria do processo de separação, é agora necessário que a vazão de alimentação seja igual ao dobro da vazão do rejeito. No presente caso, a vazão máxima de alimentação deve ser portanto igual a 0,094 g/min, que concorda satisfatoriamente com o valor máximo empregado. Evidentemente, é possível aumentar a vazão de alimentação mediante a elevação da pressão axial. Todavia, esta elevação exigiria o emprego de temperaturas do rotor demasiadamente elevadas a fim de evitar a condensação do vapor de UF₆ na parede do rotor.

Os dados das Tabelas VIII e X colocados num gráfico dos fatores de separação α , β e A em função da vazão de alimentação fornecem curvas representadas nas Figuras 25 e 26, respectivamente. Estas curvas mostram que o enriquecimento diminui com o aumento da vazão de alimentação, a partir dos valores de α , β e A correspondentes ao refluxo total, como requer a equação (104). Todavia, em ambos os casos, os valores de α são diferentes dos de β , indicando que o processo de separação não ocorreu simetricamente durante a operação da centrífuga em condições de produção, apesar do ajuste das vazões do produto e do rejeito à metade do valor da vazão de alimentação, que foi realizado para c

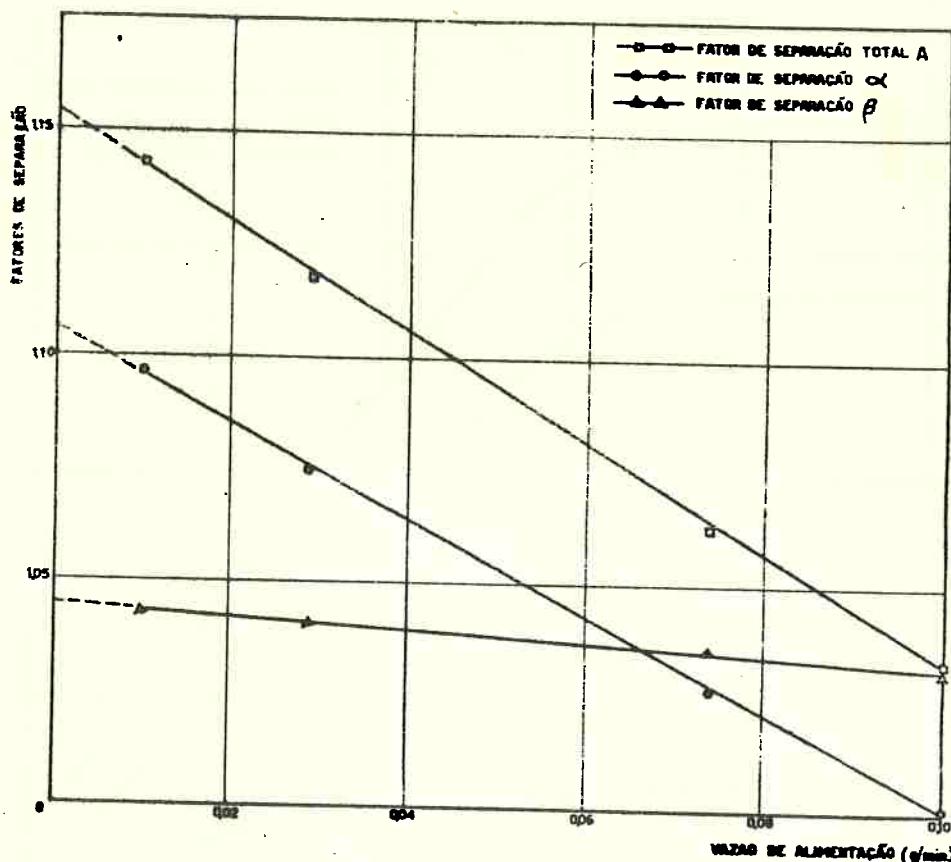


Figura 25 - Gráfico dos fatores de separação em função da vazão de alimentação ($\Delta T = 18,3 \pm 0,3^\circ\text{C}$)

da uma das vazões de alimentação, como mostram as Tabelas VII e IX. Além disto, as curvas revelam que a assimetria do processo não se mantém constante com o aumento da vazão de alimentação, constatando-se em ambos os casos um decréscimo bastante acentuado no fator de separação do produto α . Este resultado é surpreendente, quando comparado com os dados obtidos por GROTH e colaboradores (II) na separação dos isótopos de urânio realizada com a centrífuga U2III B operando nas velocidades periféricas de 252 m/s e 280 m/s. Neste caso, os dados correspondentes à velocidade periférica de 252 m/s e as vazões de alimentação medidas diretamente dentro do intervalo de 0,002 a 0,42 g/min, mostram que os fatores de separação α e β são praticamente iguais e que estas grandezas variam linearmente com a vazão de alimentação, a variação sendo muito pequena dentro do intervalo de vazões considerado.

A fim de facilitar a interpretação dos resultados por nós obtidos, convém analisar quantitativamente a assimetria observada, mediante o cálculo do corte θ a partir dos fatores de separação α e β medidos. Da equação (7), segue-se que o corte é dado por:

$$\theta = \frac{N - N''}{N' - N''} \quad (108)$$

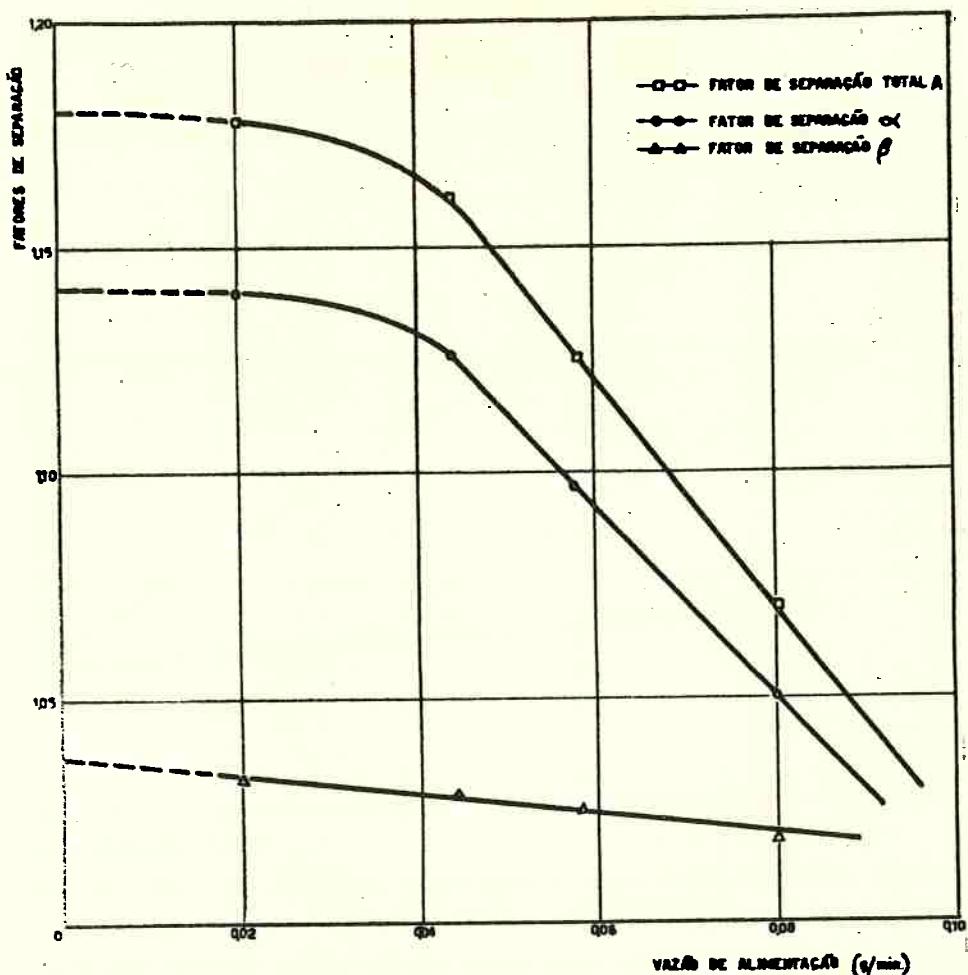


Figura 26 - Gráfico dos fatores de separação em função da vazão de alimentação ($\Delta T = 19,5 \pm 0,3^\circ\text{C}$)

Introduzindo-se na equação (108) a relação $N = R/(1 + R)$ e as definições (1) e (2), resulta:

$$\theta = \frac{(1 - 1/\beta)(1 + \alpha R)}{(\alpha - 1/\beta)(1 + R)} \quad (109)$$

Os valores de θ calculados com auxílio da equação (109) para os valores de α e β obtidos nas experiências de enriquecimento dinâmico são apresentados na Tabela XII.



TABELA XII
ASSIMETRIA DO PROCESSO DE SEPARAÇÃO

EXPERIÊNCIA N° 8

$\Delta T = 18,3^\circ\text{C}$ $R = 0,00752$

<u>L</u> (g/min)	α	β	θ	<u>L</u> (g/min)	α	β	θ
---------------------	----------	---------	----------	---------------------	----------	---------	----------

0,010	1,096	1,043	0,299	0,020	1,140	1,032	0,182
0,029	1,075	1,041	0,342	0,044	1,126	1,030	0,187
0,074	1,025	1,036	0,583	0,058	1,097	1,025	0,198
0,100	1,002	1,032	0,934	0,080	1,050	1,019	0,275

Colocando-se os valores de θ da Tabela XII num gráfico em função da vazão de alimentação L obtém-se as curvas representadas na Figura 27. Observa-se deste gráfico que para pequenas vazões de alimentação os valores de θ são pequenos e, portanto, a assimetria é grande. Com o

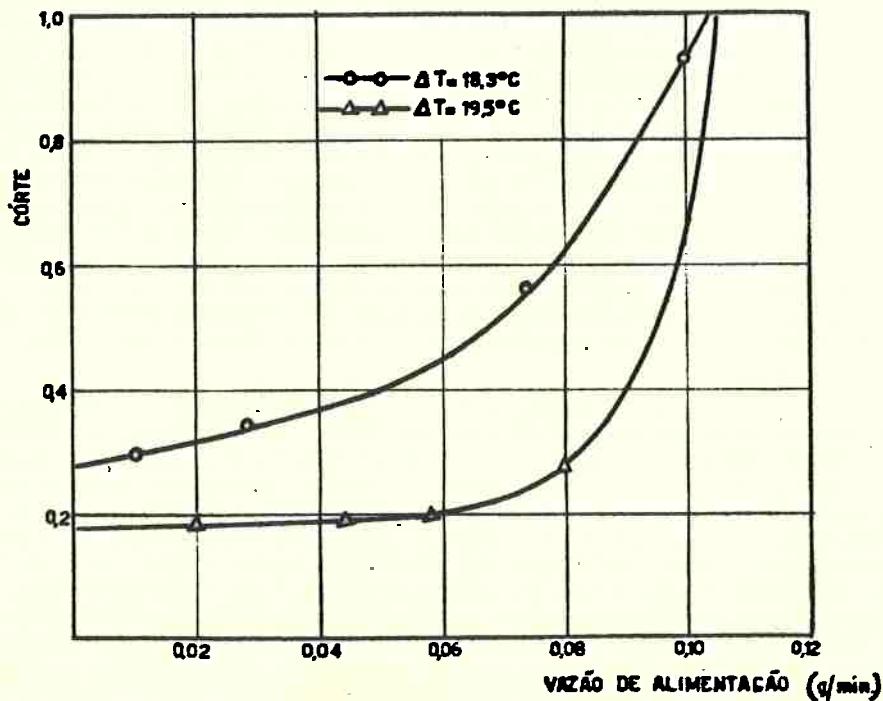


Figura 27 - Gráfico do corte em função da vazão de alimentação

aumento da vazão de alimentação, aumenta também a variação de θ com L e a assimetria diminui. Quando $L = 0,06$ g/min na experiência nº 8 e $L = 0,095$ g/min na experiência nº 11, o processo se torna simétrico. Para vazões de alimentação superiores a estes valores, a assimetria aumenta, o aumento sendo mais pronunciado na experiência nº 11 do que na experiência nº 8. Finalmente, quando a vazão de alimentação é maior do que 0,1 g/min, em ambos os casos, o corte tende para a unidade, pois nestas vazões $\alpha \rightarrow 1$.

As causas prováveis da assimetria observada podem ser encontradas na ação dos seguintes fatores: (1) a possibilidade da mistura da fração empobrecida com o gás de composição isotópica natural por passagem pelo anel de vedação, (2) a diferença entre as resistências de escoamento do gás nos eixos tubulares da centrífuga, (3) o modo do aquecimento da tampa superior do rotor determinado pela ação das correntes de Foucault e (4) a reação química do hexafluoreto de urâno com o óleo dos labirintos e o material dos anéis de vedação.

O primeiro fator explicaria o fato do fator de separação do rejeito β apresentar sempre valores menores do que os do fator de separação do produto α . Neste caso, havendo mistura do rejeito com a alimentação através do anel de vedação no labirinto superior, o rejeito apresentaria um empobrecimento menor do que o empobrecimento que ocorre no interior do rotor. Caso esta hipótese fosse verdadeira, o empobrecimento deveria ser cada vez menor, a medida que a vazão de alimentação aumenta, pois então haveria um aumento progressivo da passagem de gás através do anel de vedação. Consequentemente, o fator de separação β deveria apresentar um decréscimo acentuado com o aumento da vazão. Todavia não é este o andamento de β que se observa nas Figuras 25 e 26; pelo contrário, os valores de β diminuem lentamente na mesma proporção da observada nas experiências de GROTH e colaboradores (11). Além disto a soma das vazões do rejeito e do produto é, dentro do erro experimental, igual à vazão de alimentação, como mostram as Tabelas VII e IX, de modo que se ocorreu a passagem de gás de composição isotópica natural através do anel de vedação, esta deve ter sido muito pequena. Finalmente, as duas experiências de separação foram realizadas com anéis de vedação com orifício de diâmetros internos diferentes e em ambas as experiências apresentou praticamente a mesma variação. Nestas condições, a causa principal da diferença entre os fatores de separação parciais não deve ter sido a mistura do gás empobrecido com o gás de composição isotópica natural.

Quanto ao segundo fator, o escoamento do produto da separação se dá através do eixo tubular inferior, no qual a resistência ao escoamento é muito menor que no canal entre os dois tubos do eixo superior através do qual escoa o rejeito. Como nestas condições o produto é retirado com maior facilidade e diretamente da região axial do rotor, é possível que esta extração determine no interior do rotor o estabelecimento de uma corrente descendente mais favorável do que ascendente, a qual, escoando ao longo da parede do rotor, se enriquece do isótopo pesado. Este efeito poderia ocorrer mesmo para vazões do produto e do rejeito ajustadas simetricamente, uma vez que este ajuste é efetuado mediante a manipulação das válvulas 13 e 31 da Figura 10, situadas em posições bastante afastadas da centrífuga. Estaria, evidentemente, implícito nesta suposição, que a retirada do rejeito do interior do rotor determinaria uma certa perturbação na contra-corrente, a qual favoreceria o enriquecimento para pequenas vazões e forneceria assim a grande assimetria observada nestas vazões. Esta pertur-

bação está, porém, em contradição com as observações feitas por GROTH e colaboradores acerca da grande estabilidade da contracorrente gasosa estabelecida por convecção térmica. Esta estabilidade foi também verificada na presente investigação e na separação dos isótopos de argônio anteriormente realizada, na qual empregamos vazões de alimentação muito mais elevadas sem, contudo, constatar a presença de qualquer processo de separação assimétrico quando o corte era ajustado ao valor igual a 0,5. Nestas condições, é pouco provável que a diferença entre as resistências de escoamento nos eixos tubulares da centrífuga possa determinar a assimetria observada no sentido de favorecer o enriquecimento em pequenas vazões e prejudicá-lo em vazões elevadas.

A maneira de aquecer a tampa superior do rotor parece ser uma das principais causas que determinam a ocorrência do processo de separação assimétrico. Realmente, o modo pelo qual este aquecimento é realizado constitui uma das diferenças fundamentais entre a centrífuga ZG3 e a centrífuga UZIII B. Nesta última, tanto o aquecimento de uma das tampas do rotor como o resfriamento da outra tampa, são efetuados, respectivamente, pela circulação da água quente e água fria através das serpentinhas situadas ao redor das tampas. Nas experiências de separação realizadas por GROTH e colaboradores (11) com este dispositivo experimental foi possível aquecer a tampa superior e resfriar a tampa inferior ou, vice-versa, resfriar a tampa superior e aquecer a inferior. Em ambos os casos, estes pesquisadores obtiveram o processo de separação simétrico. Na centrífuga ZG3, o aquecimento da tampa superior é provocado pelas correntes de Foucault numa região próxima à do eixo do rotor, de modo que a distribuição de temperaturas ao longo desta tampa difere necessariamente da existente na tampa correspondente da centrífuga UZIII B. Como já observaram LOS E KISTEMAKER (38), a separação de isótopos na centrífuga de contracorrente estabelecida térmicamente é aumentada quando a diferença de temperatura entre as tampas do rotor não é constante, mas varia com o raio do rotor, e de tal modo que esta diferença de temperatura seja a maior possível nas regiões próximas do eixo e diminua ao longo do raio do eixo para a periferia. Com o tipo de aquecimento utilizado parece que esta condição é satisfeita na centrífuga ZG3. Graças a este aquecimento obter-se-ia então o estabelecimento de uma contracorrente no interior do rotor, a qual favorece, pelo menos para pequenas vazões, o enriquecimento do isótopo leve, explicando assim a grande assimetria que se observa neste intervalo de vazões. Por outro lado, o fato de tal comportamento não ter sido observado nas experiências de separação dos isótopos de argônio pode ser interpretado, considerando que, por ser um gás relativamente leve, o argônio apresenta no interior do rotor um gradiente de pressão relativamente pequeno. Em virtude disto, a convecção seria neste caso muito menos afetada pelo efeito em questão, do que no caso de um gás relativamente pesado, como o UF₆, o qual apresenta uma elevada relação entre as pressões no eixo e na periferia do rotor de 1/400 nas condições de operação empregadas na presente investigação.

Finalmente, a reação química do UF₆ com o vapor de óleo presente nos labirintos e com o material dos anéis de vedação parece ser o fator responsável pela grande variação da assimetria que ocorre com o aumento da vazão. Esta reação, como já mencionamos no Capítulo anterior, é muito intensa no labirinto inferior, do qual é retirado o produto da separação. Como a extensão desta reação aumenta à medida que maiores quantidades de UF₆ entram neste labirinto, resulta que com o aumento da vazão da alimentação, as vazões do produto que saem do rotor e entram no

eixo tubular inferior são na realidade muito maiores do que as medidas com o medidor de vazão. Estas últimas, ajustadas ao processo de separação simétrico correspondem, então, em grande parte, às vazões dos produtos voláteis formados na decomposição do UF₆. Como a experiência nº 8 foi realizada com vazões de alimentação progressivamente mais elevadas, a extensão da reação química também deve ter aumentado progressivamente. Nestas condições, quantidades cada vez menores de UF₆ se encontram presentes nas vazões do produto medidas, enquanto que, na realidade, quantidades cada vez maiores do produto atravessaram o eixo tubular inferior, como mostram os valores do corte apresentados na Tabela XII ou na Figura 27. Por este motivo, pode ocorrer a grande diminuição do fator de separação do produto α observada na Figura 25. Por outro lado, na experiência nº 11, foram realizadas em primeiro lugar as medidas dos fatores de separação para as grandes vazões de alimentação. Como durante a realização destas medidas grande parte do UF₆ deve ter reagido, nas medidas seguintes feitas para as vazões menores, a reação foi menos intensa, razão pela qual o corte permanece praticamente constante até vazões de alimentação de cerca de 0,06 g/min, como mostra a Figura 27. Consequentemente, o primeiro trecho das curvas de α e A em função da vazão de alimentação, pode apresentar os patamares indicados na Figura 26.

A discussão apresentada mostra que a assimetria observada parece ser proveniente da maneira segundo a qual é realizado o aquecimento da tampa superior do rotor e da reação química que ocorre nos labirintos da centrífuga entre o UF₆ e os vapores de óleo e o material dos anéis de vedação. O aquecimento da tampa superior, efetuado pelas correntes de Foucault em regiões próximas à do eixo, conduz ao estabelecimento de uma contracorrente que favorece o enriquecimento, razão pela qual, em pequenas vazões, o fator de separação do produto é sempre maior do que o do rejeito e a assimetria é elevada nesta região de vazões. Embora este fato não permita chegar ao processo de separação simétrico mediante o ajuste das vazões do produto e do rejeito, a centrífuga ZG3 é mais vantajosa do que a UZIII/B, se considerarmos apenas o enriquecimento no intervalo de pequenas vazões de alimentação. Todavia, esta assimetria, que aumenta o enriquecimento, é progressivamente destruída, à medida que aumenta a vazão de alimentação, em virtude da reação química que se processa nos labirintos. A presente investigação mostra assim que esta reação, não somente fornece produtos de decomposição do UF₆ indesejáveis, como também afeta o processo de separação no sentido de diminuir consideravelmente o enriquecimento do isótopo ²³⁵U. Nestas condições, para vazões de alimentação grandes, que apresentam interesse prático, a centrífuga ZG3 apresenta nítidas desvantagens em relação à centrífuga UZIII/B.

A fim de aperfeiçoar a máquina e ao mesmo tempo verificar melhor estas conclusões, torna-se necessário introduzir diversas modificações na centrífuga. Por este motivo, está prevista a realização de novas experiências de separação de urânio com (1) o uso de anéis de vedação com furo de menor diâmetro a fim de eliminar da melhor maneira possível a possibilidade da mistura entre gases de composição isotópica diferente, (2) a colocação de um pequeno cilindro de teflon perfurado na entrada do eixo tubular inferior, de modo a obter-se a mesma resistência de escoamento para o produto e o rejeito da separação e (3) a modificação do labirinto inferior no sentido de diminuir a reação entre o UF₆ e os vapores de óleo presentes neste labirinto.

3. POTENCIAL DE SEPARAÇÃO DA CENTRÍFUGA NA SEPARAÇÃO DOS ISÓTOPOS DE URÂNIO

O potencial de separação da centrífuga δU , para processos de separação assimétricos, é calculado a partir dos fatores de separação parciais α e β e da vazão de alimentação L com auxílio da equação (26). Embora no presente caso a assimetria do processo de separação não seja proveniente do ajuste das vazões do produto e do rejeito, mas parece resultar de características da centrífuga e do gás que está sendo processado, convém calcular os valores do potencial de separação com os dados obtidos nas experiências de enriquecimento dinâmico e compará-los com os valores obtidos por GROTH e colaboradores (11). Aplicando então a equação (26) para valores de α , β e L extraídos das curvas do enriquecimento em função da vazão de alimentação apresentadas nas Figuras 25 e 26, obtém-se as curvas de δU em função de L representadas na Figura 28.

As curvas da Figura 28 mostram que em ambas as experiências o potencial de separação passa por máximo correspondente a vazões de alimentação compreendidas entre 0,045 e 0,050 g/min. Na experiência nº 8, efetuada com a diferença de temperatura entre as tampas do rotor $\Delta T = 18,3^{\circ}\text{C}$, o potencial de separação máximo é $(\delta U)_{\max} = 5 \times 10^{-5}$ g/min e na experiência nº 11 realizada com a diferença de temperatura $\Delta T = 19,5^{\circ}\text{C}$, o potencial de separação máximo é $(\delta U)_{\max} = 7,3 \times 10^{-5}$ g/min.

O aumento $(\delta U)_{\max}$ com o aumento de ΔT ocorre porque na experiência nº 11 a diferença de temperatura entre as tampas do rotor se aproxima mais do seu valor ótimo de $20,5^{\circ}\text{C}$ do que na experiência nº 8. A experiência nº 11 foi, na realidade, planejada para ser realizada com a diferença de temperatura ótima. Todavia, devido ao ajuste imperfeito da corrente elétrica, que determina a produção das correntes de Foucault na tampa superior, não foi possível atingir exatamente esta diferença de temperatura.

O potencial de separação teórico de uma centrífuga é dado pela equação (58). No presente caso, $\omega r_2 = 299,7 \text{ m/s}$, $T = 318^{\circ}\text{K}$ e $Z = 66,5 \text{ cm}$. Introduzindo estes dados na equação (58) e lembrando que para o UF₆ $\rho D = 2,35 \times 10^{-4} \text{ g/cm/s}$, o potencial máximo teórico da centrífuga ZG3 seria igual a $(\delta U)_t^{\max} = 3,82 \times 10^{-3} \text{ g/min}$. Comparando-se este valor com o valor encontrado na experiência de separação realizada com $\Delta T = 19,5^{\circ}\text{C}$, resulta que o potencial de separação máximo determinado experimentalmente é apenas $0,019 (\delta U)_t^{\max}$. Este valor é extremamente baixo em comparação com os potenciais de separação máximos de $0,70 (\delta U)_t^{\max}$ e $0,74 (\delta U)_t^{\max}$ obtidos nas respectivas velocidades periféricas de 252 m/s e 280 m/s , por GROTH e colaboradores (11) com a centrífuga UZIIIB.

O pequeno valor do potencial de separação máximo obtido na presente investigação provém do pronunciamento decréscimo do fator de separação do produto α , que ocorre com o aumento da vazão de alimentação (Figuras 25 e 26) e parece ser determinado pela decomposição de UF₆ no labirinto inferior da centrífuga. Esta reação conduz, portanto, a um outro inconveniente da centrífuga ZG3, a saber, a redução acentuada de seu potencial de separação máximo. Como a economia do processo de separação está condicionada a esta grandeza, segue-se que a operação da centrífuga ZG3 é menos econômica do que a da centrífuga UZIIIB.

Uma outra diferença que se nota em relação aos valores dos potenciais de separação obtidos na presente investigação e aos do trabalho

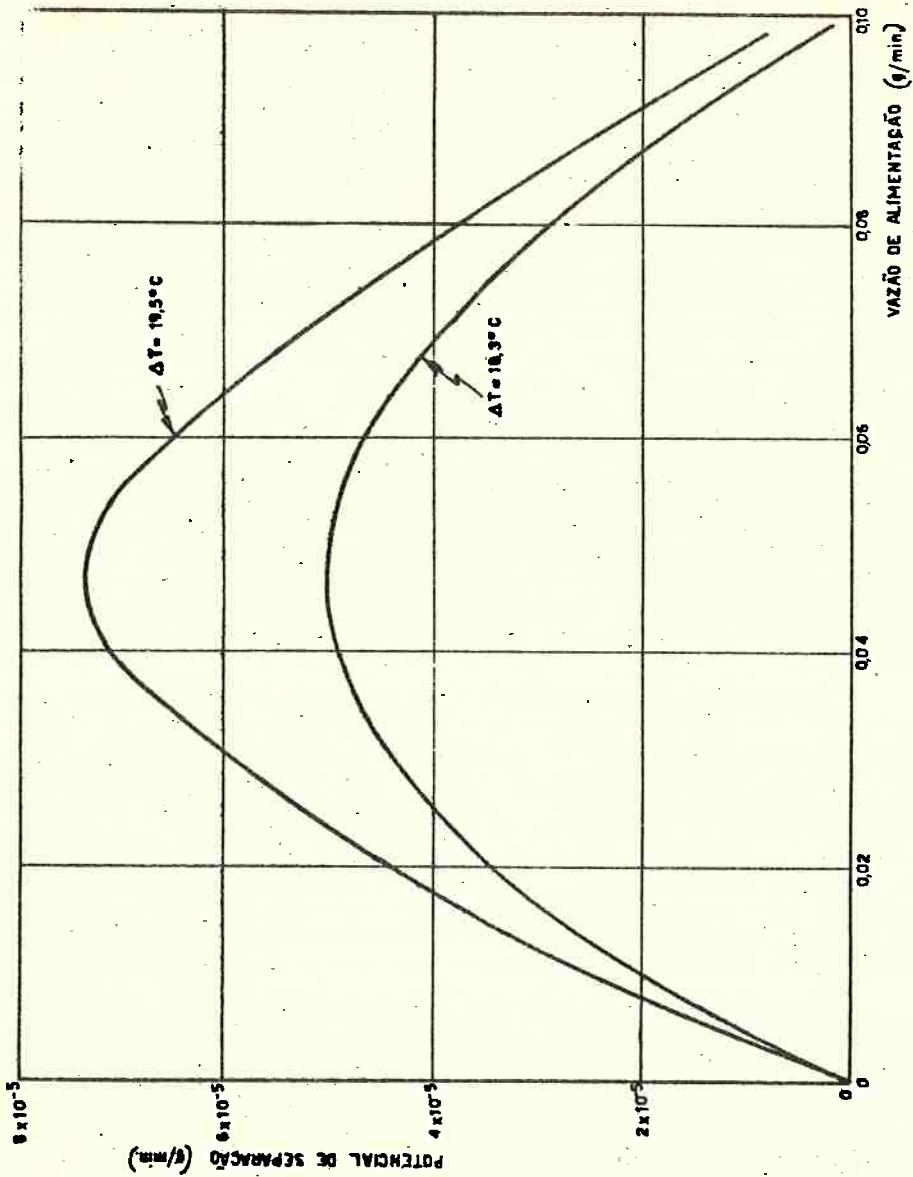


Figura 28 - Gráfico do potencial de separação em função da vazão de alimentação

de GROTH e colaboradores (11), é o intervalo de vazões de alimentação dentro do qual ocorre o potencial de separação máximo. Assim, das medidas por nós realizadas, resulta que os valores de $(\delta U)_{max}$ estão situados no intervalo de vazões de alimentação compreendido entre 0,045 e 0,050 g/min, enquanto que os valores correspondentes encontrados pelos pesquisadores alemães ocorrem em vazões de alimentação compreendidas entre 0,7 e 1,0 g/min. Esta diferença resulta do fato do fator de separação α apresentar em nossas experiências um decréscimo acentuado em pequenas vazões de alimentação, ao contrário do que se observa com os valores do fator de separação total obtido por GROTH e colaboradores, os quais sómente mostram um decréscimo sensível em vazões de alimentação superiores a 0,5 g/min.

Convém mencionar aqui que para obter os valores máximos dos potenciais de separação nas vazões de alimentação mencionadas, GROTH e colaboradores realizaram medidas indiretas destas vazões, pois com a centrífuga UZIII B não era possível medir diretamente vazões de alimentação superiores a 0,42 g/min. Para isto os pesquisadores alemães estenderam o intervalo de medida do fator de separação α para vazões superiores a 0,42 g/min por meio de experiências de enriquecimento estático, nas quais era medida a variação de α em função do tempo. Conhecida então a quantidade de hexafluoreto de urânio G presente no rotor e determinado o valor de α no tempo t, este fator de separação era considerado como sendo o valor correspondente à vazão de alimentação $L = G/t$, caso fosse possível operar a centrífuga com esta vazão. Com auxílio dos valores de α e L obtidos desta maneira no processo de separação simétrico, GROTH e colaboradores estabeleceram graficamente a dependência entre o fator de separação total $A = \alpha^2$ e a vazão de alimentação, para vazões superiores às experimentalmente acessíveis com a centrífuga UZIII B. A partir dos valores de α e L extraídos destas curvas, estes pesquisadores construiram então as curvas correspondentes de δU em função de L, que forneceram os máximos acima mencionados. Como a operação econômica da centrífuga ocorre nas vazões de alimentação correspondentes às do potencial de separação máximo, segue-se assim que na prática não é possível obter-se o funcionamento econômico com a centrífuga UZIII B. Todavia, os potenciais de separação medidos, que poderiam ser fornecidos por esta centrífuga, apresentam interesse teórico, pois permitem o estudo do perfil de escoamento no interior do rotor, que foi apresentado no Capítulo I.

Na presente investigação foi também realizada uma experiência de enriquecimento estático, a saber, a experiência nº 10, na qual se pretendeu determinar a variação do fator de separação parcial α em função do tempo, com a finalidade de estender o intervalo de medidas a vazões de alimentação superiores a 0,1 g/min. Todavia esta experiência não forneceu resultados reproduutíveis e, além disto, o processo de separação não ocorreu simetricamente, apesar do ajuste simétrico das vazões do produto e do rejeito, de modo que não teria sido possível aplicar o método utilizado por GROTH e colaboradores.

Finalmente, consideremos o potencial de separação máximo fornecido pela centrífuga ZG3 no caso ideal em que não se verificaria a grande variação da assimetria observada. Neste caso, os valores experimentais do fator de separação α estariam situados no prolongamento do patamar observado na região inicial da curva da α em função da vazão de alimentação representada na Figura 26. Utilizando-se estes valores de α , constata-se que o potencial de separação da centrífuga aumenta continuamente sem passar por um máximo no intervalo de vazões de alimentação

apresentado no gráfico da Figura 28. Para determinar então o valor máximo do potencial de separação seria necessário extender o intervalo da medida de α e β para valores da vazão de alimentação superiores às do intervalo considerado. Como já mostramos, não foi possível realizar esta extensão de medidas na presente investigação. Por outro lado, os valores do potencial de separação calculados na hipótese de não ocorrer a variação da assimetria do processo de separação são comparáveis aos obtidos por GROTH e colaboradores. Nestas condições, podemos lançar mão do valor do potencial de separação máximo encontrado numa das experiências de separação efetuadas por estes pesquisadores com a centrífuga UZIIIB para calcular o potencial de separação máximo que deveria ser fornecido pela centrífuga ZG3. Além disto, GROTH e colaboradores (11) verificaram que a relação dos potenciais de separação máximos medidos em duas velocidades periféricas diferentes $(\delta U)_{max,1}/(\delta U)_{max,2}$ é aproximadamente igual à relação entre os dois potenciais de separação máximos teóricos correspondentes a estas velocidades $(\delta U)_{max,1}^t/(\delta U)_{max,2}^t$. Para a centrífuga ZG3 ($Z_1 = 66,5$ cm, $(\omega r_2)_1 = 299,7$ m/s e $T_1 = 318^{\circ}\text{K}$) e para a centrífuga UZIIIB ($Z_2 = 63,5$ cm, $(\omega r_2)_2 = 280$ m/s e $T_2 = 310^{\circ}\text{K}$), da equação (58) resulta que a relação entre os potenciais de separação máximos teóricos é:

$$\frac{(\delta U)_{max,1}^t}{(\delta U)_{max,2}^t} = \frac{(\omega r_2)_1^4}{(\omega r_2)_2^4} \frac{T_2}{T_1} \frac{Z_1}{Z_2} = 1,17 \quad (110)$$

Então, considerando que o potencial de separação máximo medido com a centrífuga UZIIIB nas condições de operação apresentadas é $(\delta U)_{max,2} = 2,2 \times 10^{-3}$ g/min, resulta para a centrífuga ZG3:

$$(\delta U)_{max,1} = 1,17 (\delta U)_{max,2} = 2,57 \times 10^{-3} \text{ g/min}$$

Este valor é, portanto, o potencial de separação máximo que a centrífuga ZG3 forneceria para a ótima diferença de temperatura entre as tampas do rotor de $\Delta T_{ot} = 20,5^{\circ}\text{C}$, caso o processo de separação ocorresse simetricamente e não se verificasse qualquer variação na simetria do processo. Nas experiências de separação previstas com as modificações anteriormente mencionadas, também deverá ser verificada a confirmação desse valor do potencial de separação máximo.

4. CONCLUSÕES

A separação dos isótopos de urânio, na forma de hexafluoreto, realizada na presente investigação com a centrífuga a gás, modelo ZG3, de contracorrente estabelecida por convecção térmica, operando com a velocidade periférica de 300 m/s e a temperatura do rotor de 45°C , permite chegar às seguintes conclusões:

1. O comportamento mecânico da centrífuga foi plenamente satisfatório com a passagem de vapor de hexafluoreto de urânio através da máquina durante os períodos de funcionamento utilizados.
2. As dificuldades determinadas pela agressividade química do

hexafluoreto de urânia residem na reação deste composto com o material dos anéis de vedação e com os vapores de óleo presentes nos labirintos da centrífuga. Estas dificuldades, embora não perturbem o funcionamento mecânico da centrífuga, parecem influir no processo de separação. Além disso, os produtos de decomposição sólidos formados nestas reações podem chegar a obstruir os orifícios na saída do gás do eixo tubular superior limitando assim o período de separação contínua dos isótopos em questão. Os produtos de decomposição voláteis impurificam a fonte iônica do espectrômetro de massas, contribuindo assim à diminuição do período de realização das análises isotópicas. A decomposição química do hexafluoreto de urânia é mais pronunciada no labirinto inferior, do qual é retirado o produto da separação.

3. As experiências efetuadas permitiram estabelecer definitivamente o modo de operar que permite a realização contínua da separação dos isótopos e da análise isotópica.

4. As experiências de separação realizadas em refluxo total conduziram à determinação do máximo fator de separação total A que é igual a 1,195. À este valor corresponde para o processo de separação simétrico, o fator de separação parcial do produto de 1,093, ou seja, um enriquecimento de 9,3%. A diferença de temperatura entre as tampas do rotor na qual o fator de separação máximo foi obtido é igual a $20,5 \pm 0,5^\circ\text{C}$.

5. O máximo fator de separação total determinado experimentalmente é praticamente igual ao fator de separação calculado, em condições de refluxo total, segundo a teoria da centrífuga contracorrente desenvolvida por MARTIN e KUHN (10). Este valor máximo é ainda igual a 92% do fator de separação máximo teórico, que a centrífuga pode fornecer quando a contracorrente no interior do rotor apresenta o perfil de escoamento ótimo. A proximidade destes dois fatores de separação máximos mostra que, em refluxo total, a centrífuga possui uma elevada eficiência na separação dos isótopos de urânia e que o perfil de escoamento real da contracorrente no interior do rotor não diverge muito do perfil de escoamento ótimo, quando a diferença de temperatura entre as tampas do rotor, responsável pelo estabelecimento da contracorrente, é igual a $20,5^\circ\text{C}$.

6. Nas experiências de separação realizadas em condições de produção, o enriquecimento diminui com o aumento da vazão de alimentação, como requer a teoria da centrífuga contracorrente. Todavia, o processo de separação ocorre assimetricamente, apesar do ajuste das vazões do produto e do rejeito para o corte $\theta = 0,5$. Para pequenas vazões de alimentação, o enriquecimento do isótopo ^{235}U é sempre maior do que o respectivo empobrecimento e vem acompanhado de uma pequena variação na assimetria do processo de separação. Com o aumento da vazão de alimentação, o enriquecimento apresenta um pronunciado decréscimo, que corresponde a uma grande variação na assimetria do processo de separação.

7. A assimetria observada para pequenas vazões de alimentação é atribuída à maneira com a qual se realiza o aquecimento da tampa superior do rotor. Este tipo de aquecimento determinaria o estabelecimento, entre as tampas do rotor, de gradientes de temperatura em direção axial, os quais variam em função do raio do rotor, de modo a favorecer o enriquecimento realizado pela corrente descendente na região axial da centrífuga.

8. A variação da assimetria do processo de separação, que se

observa com o aumento da vazão de alimentação, é interpretada como sendo proveniente do aumento da reação de decomposição do hexafluoreto de urânio que ocorre nos labirintos da centrífuga. Como esta reação é muito intensa no labirinto inferior, as vazões do produto, que entram no eixo tubular inferior, são na realidade maiores do que as vazões medidas, determinando assim uma diminuição no enriquecimento, que é maior do que a prevista a partir das vazões medidas. Desta maneira, com o aumento da vazão de alimentação e, portanto, da vazão do produto, ocorreria um aumento correspondente na extensão da reação de decomposição, de modo que as vazões do produto medidas seriam cada vez menores do que as razões reais, que entram no eixo tubular inferior e são responsáveis pela diminuição do enriquecimento.

9. Em virtude da grande variação da assimetria do processo de separação, o potencial de separação máximo, medido para uma diferença de temperatura entre as tampas do rotor que se encontra próxima da diferença de temperatura ótima, apresenta um valor que é igual a apenas 2% do potencial de separação máximo teórico da centrífuga. Este pequeno valor do potencial de separação máximo e a pequena vazão de alimentação, na qual este máximo ocorre, limitam seriamente o valor econômico da centrífuga na sua operação em condições de produção de urânio enriquecido.

10. Devido à grande resistência de escoamento dos eixos tubulares da centrífuga, a máxima vazão de alimentação de UF_6 introduzida no rotor sob a pressão axial de 1 Torr foi igual a 0,1 g/min. Nestas condições, caso fosse possível obter um potencial de separação máximo idêntico ao calculado por comparação com os dados de GROTH e colaboradores (11), a centrífuga não poderia ser operada de modo a fornecer este potencial de separação máximo, pois para atingí-lo seria necessário utilizar vazões de alimentação superiores a 0,1 g/min.





REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- (1) F.A. LINDEMANN and F.W. ASTON - Phil. Mag. (6) 37, 523 (1919)
- (2) J. JOLY and J.H.J. POOL - Phil. Mag. (6) 39, 372 (1920)
- (3) J.W. BEAMS - High Speed Ultracentrifuging - Rev. Mod. Phys. 10, 245 (1938)
- (4) J.W. BEAMS and C. SKARSTROM - The Concentration of Isotopes by the Evaporative Centrifuge Method - Phys. Rev. 56, 266 (1939)
R.F. HUMPHREYS - Separation of Bromine Isotopes by Centrifuging - Phys. Rev. 56, 684 (1939)
- (5) J.W. BEAMS, A.C. HAGG and E.V. MURPHREE - Developments in the Centrifuge Separation Project - U.S. At. Energy Comm. TID-5230 (1951)
- (6) K. COHEN - "The Theory of Isotope Separation as Applied to Large-scale Production of U-235" - National Nuclear Series, Division III - Vol. 1B, Mc Graw-Hill Book Co., Inc., New York, 1951
- (7) H.C. UREY - Repts. Progr. Phys. 6, 48 (1939)
- (8) H.D. SMYTH - "Atomic Energy for Military Purposes" - Princeton University Press, Princeton, N.J., 1945
- (9) K. BEYERLE, W. GROTH, P. HARTECK und H. JENSEN - "Ueber Gaszentrifugen" - Beihefe zu "Angewandte Chemie" u. "Chemie-Ingenieur-Technik" Nr. 59, Verlag Chemie G.m.b.H., Weinheim, 1950
- (10) H. MARTIN und W. KUHN - Multiplikationsverfahren zur Trennung von Gasgemischen, insbesondere bei Anwendung von Schwerfeldern - Z. phys. Chem. A189, 219 (1941)
- (11) K. BEYERLE, W. GROTH, H. IHLE, A. MURRENHOFF, E. NANN und K.H. WELGE - Anreicherung der Uranisotope nach dem Gaszentrifugenverfahren - "Proceedings of the Internaciona Symposium on Isotope Separation", Ed. J. Kistemaker, J. Bigeleisen and A.O. Nier, 667, North-Holland Publ. Co., Amsterdam, 1958
W. GROTH, K. BEYERLE, H. IHLE, A. MURRENHOFF, E. NANN und K.H. WELGE - "Anreicherung der Uran-Isotope nach dem Gaszentrifugenverfahren" - Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein - Westfalen Nr. 510, Westdeutscher Verlag, Koeln u. Opladen, 1958

- (12) W.E. GROTH, K. BEYERLE, E. NANN and K.H. WELGE - Enrichment of the Uranium Isotopes by the Gascentrifuge Method - "Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy", Geneva, vol. 4, 349 (1958), P/1807 Germany (Fed. Rep.)
- (13) W. GROTH - Deutsche Vefahren zur Anreicherung der Uran - Isotope - Chem.-Ing.-Techn. 31, 310 (1959)
- (14) K.H. WELGE - "Ueber die Trennung der Uranisotope mit einer thermisch gesteuerten Gegenstrom-Gaszentrifuge" - Tese de Doutoramento, Universidade de Bonn, Bonn, (1957)
- (15) I. JORDAN - A separação de isótopos pelo processo da centrifugação gasosa - Publicação Nº 772, Instituto de Pesquisas Tecnológicas, São Paulo, (1966)
- (16) W. BULANG, W. GROTH, I. JORDAN, W. KOLBE, E. NANN und K. H. WELGE - Ueber das Trennpotential thermisch gesteuerte Gegenstrom-Gaszentrifugen. II. Unsymmetrischer Trennprozess - Z. phys. Chem. (Frankfurt) 24, 249 (1960)
- (17) W. BULANG, W. GROTH und E. NANN - Thermisch gesteuerte Gegenstromzentrifugen mit axialem und radialem Temperaturgradienten - Z. phys. Chem. (Frankfurt) 25, 283 (1960)
- (18) W. GROTH - Anreicherung der Uranisotope nach dem Gaszentrifugen verfahren - Nukleonik 1, 68 (1958)
- (19) H. MARTIN - Konvektionsvorgaenge in der Gaszentrifuge - Z. Elektrochem. 54, 120 (1950)
- (20) G. ZIPPE, J.W. BEAMS and A.R. KUHLTHAU - The Development of Short Bowl Ultracentrifuges - U.S. At. Energy Comm. ORO - 210, (1958)
- (21) M. STEENBECK - Erzeugung einer selbstkaskadiereden Axialstroemung in einer langen Ultrazentrifuge zur Isotopen trennung - Kernenergie 1, 921 (1958)
- (22) N.M. ZAVORONKOV und K.I. SAKODYNSKIJ - Entwicklungsrichtungen bei der Erarbeitung von Verfahren zur Trennung stabiler Isotope - Kernenergie 5, 211 (1962)
- (23) J. W. BEAMS, L.B. SNODDY and A.R. KUHLTAU - Test of the Theory of Isotope Separation by Centrifuging - "Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy", Geneva, vol. 4, 428 (1958), P/723 (USA)
- (24) J. KISTEMAKER, J. LOS and E.J.J. VELDHUYZEN - The Enrich-

- ment of Uranium Isotopes by Ultracentrifuges - "Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy", Geneva, vol. 4, 435 (1958). P/1121(Netherlands)
- (25) G. ZIPPE - The Development of Short Bowl Ultracentrifuges - U.S. At. Energy Comm. ORO-315 (1960)
- (26) Nucleonics 17 (10), 17 (1959); 17 (11), 31 (1959)
- (27) Nucleonics 18 (9), 17 (1960)
- (28) G. ZIPPE - Potential of the Short Bowl Gas Centrifuge for the Enrichment of U-235 Isotope as compared with published Figures for Gas Diffusion - U.S. At. Energy Comm. TID-5753 (1960)
- (29) Chem. Eng. News 39 (6), 38 (1961)
- (30) Energie nucléaire 7 (8), 549 (1965); 8 (1), 56 (1966)
- (31) A. KANAGAWA - Gas centrifugal separation - Genshiryoku Hatsuden 4 (3, 4), 49 (1960)
- (32) A. KANAGAWA, Y. OYAMA - On the Isotope Separation by Counter-current Gas Centrifuge.I. - Nippon Genshiryoku Gakkaishi 3, 868 (1961)
- (33) A. KANAGAWA, Y. OYAMA - On the Isotope Separation by Counter-current Gas Centrifuge.II. - Nippon Genshiryoku Gakkaishi 3, 918 (1961)
- (34) A. KANAGAWA, Y. OYAMA and Y. TAKASHIMA - On the Isotope Separation by Countercurrent Gas Centrifuge. Influence of Gas Flow Pattern and Feed Rate upon Separative Power - Bull. Tokyo Inst. Techn. 49, 151 (1962)
- (35) A. KANAGAWA, Y. TAKASHIMA and Y. OYAMA - Isotope Separation by Concurrent Gas Centrifuge - 3rd. United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/440 (Japan), (1964)
- (36) Y. OYAMA, K. YAMAGUSHI, Y. TONOOKA, M. NANGU, H. SAKATA, Y. YAMASHIMA - Gaseous Centrifuge and Separation of Argon Isotopes - Rika Gaku Kenshyosho Hokoku 40 (4), 215 (1964)
- (37) T. WARAYA, H. TOMISHIMA, T. NISHIJIMA and K. YOSHIMURA - Developments of Nuclear Fuel - Toshiba Rev. 18, 1261 (1963)
- (38) J. LOS and J. KISTEMAKER - On the Influence of Temperature Distributions inside a Gas-centrifuge - "Proceedings of the Internatio-

nal Symposium on Isotope Separation", Ed. J. Kistemaker, J. Bige
leisen and A.O. Nier, 695, North-Holland Publ. Co., Amsterdam,
(1958)

- (39) W. GROTH und K.H. WELGE - Ueber das Trennpotential thermisch
gesteuerter Gegenstrom-Gaszentrifugen - Z. phys. Chem. (Frank-
furt) 19, 1 (1959)
- (40) H.M. PARKER and T.T. MAYO, IV - Contercurrent Flow in a Semi
infinite Gas Centrifuge; Preliminary Results - U.S. At. Energy Comm.
UVA-279 (1963)
- (41) H.M. PARKER - Countercurrent Flow in a Semi-infinite Gas Centri-
fuge; Mixed Thermal Boundary Condition - U.S. At. Energy Comm.
UVA-280 (1963)
- (42) A.S. BERMAN - A simplified Model for the Axial Flow in a long Coun-
tercurrent Gas Centrifuge - U.S. At. Energy Comm. K-1535, (1963)
- (43) A.S. BERMAN - A Theory of Isotope Separation in a long Countercur-
rent Gas Centrifuge - U.S. At. Energy Comm. K-1536, (1962)
- (44) A.S. BERMAN - Flow and Separation in a long Countercurrent Gas
Centrifuge - J. Chem. phys. 60 (1-2), 217 (1963)
- (45) P. HAMEL - Analyzing gas centrifuge for fuel fabrication - Can. Nu-
clear Techn. 4, 48 (1962)
- (46) O. BÖTTGER - Isotopentrennung mit Hilfe von Gaszentrifugen - Kern-
techn., Isotopentechn. - Chem. 6, 571 (1964)
- (47) I. JORDAN - Teoria da separação de isótopos estáveis pelo processo
da centrífuga contracorrente - Publicação Nº 773, Instituto de Pesqui-
sas Tecnológicas, São Paulo, a ser publicado em 1967.
- (48) K.H. WELGE, I. JORDAN, W. KOLBE e R. BORGES DA SILVA - Se-
paração de isótopos de argônio com uma centrífuga a gás de contra-
corrente estabelecida térmicamente - Publicação Nº 774, Instituto de
Pesquisas Tecnológicas, São Paulo, a ser publicado em 1967.
- (49) I. JORDAN, W. KOLBE e R. BORGES DA SILVA - Influência da pres-
são axial na separação de isótopos de argônio pelo processo da centri-
fugação gasosa - Publicação Nº 775, Instituto de Pesquisas Tecno-
gicas, São Paulo, a ser publicado em 1967.
- (50) I. JORDAN, W. KOLBE and R. BORGES DA SILVA - Separation of
Stable Isotopes by the Gas Centrifuge Method. Influence of the Axial
Pressure on the Separation of Argon Isotopes - 3rd. United Nations In-
ternational Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Gene-
va, P/482 (Brasil) (1964)

- (51) I. JORDAN e R. BORGES DA SILVA - Espectrometria de massas.I.
Análise de misturas gasosas de argônio e nitrogênio - Bol. Depto.
Eng. Quím. Escola Politécnica U.S.P. N° 20, 25 (1964)
- (52) I. JORDAN e R. BORGES DA SILVA - Espectrometria de massas.II.
Determinação dos potenciais de aparecimento dos íons de argônio e
de nitrogênio - Bol. Depto. Eng. Quím. Escola Politécnica U.S.P.
N° 20, 1 (1964)
- (53) J.J. KATZ e E. RABINOWITCH - "The Chemistry of Uranium. Part
I" - National Nuclear Energy Series, Division VIII-Vol. 5, Graw-Hill
Book Co., Inc., New York, 1951
- (54) B. WEINSTOCK - The 25-year Revolution in Hexafluoride Chemistry
+ Chem. Eng. News 42 (38), 86 (1964)
- (55) G.D. OLIVER, H.T. MILTON and J.W. GRISARD - The Vapor Pres-
sures and Critical Constants of Uranium Hexafluoride - J.Am.Chem.
Soc. 75, 2827 (1953)
- (56) GOODYEAR ATOMIC CORPORATION - Works Laboratory Procedu-
res, Vol. I - U.S. At. Energy Comm. GAT-115/Rev. 1, (1957)
- (57) R.L. JARRY, F.D. ROSEN, C.F. HALE and W. DAVIS Jr. - Liquid
vapor Equilibrium in the System Uranium Hexafluoride-Hydrogen Flu-
ride - J. Phys. Chem. 57, 905 (1953)
- (58) J.F. ELLIS and K.D.B. JOHNSON - The Fluorides of Uranium.I. Li-
quid Vapor Equilibria in the Systems Uranium Hexafluoride-Chlorine
Trifluoride and Uranium Hexafluoride-Bromine Pentafluoride - J.In-
org. Nucl. Chem. 6, 194 (1958)
- (59) H.W. DRAWIN - Kondensator-Membran-Manometer fuer Druckmes-
sungen in Hoch- und Feinvakuumgebiet, unabhaengig von der Gasart -
Vakuum-Techn. 7, 177 (1958)
- (60) R.P. HENRY et J.C. BLAIVE - Les Joints Métalliques pour Vide Éle-
ve et leur Utilization Industrielle - "Advances in Vacuum Science and
Technology", Ed. E. Thomas, Vol.I, 345, Pergamon Press Ltd., Ox-
ford, 1960
- (61) P.J. VAN HEERDEN - Metal Gaskets for Demountable Vacuum Sys-
tems - Rev. Sci. Instr. 26, 1130 (1955)
- (62) W.J. LANGE and D. ALPERT - Stepwise Demountable Metal Vacuum
Joint - Rev. Sci. Instr. 28, 727 (1957)
- (63) H. HINTENBERGER - Erfahrungen mit Metallfolien als Hochvakuum-
dichtungen - Z. Naturforsch. 69, 459 (1951)

- (64) M.L. LYUBIMOV, K.P. SHAKHOV and Y.A. YUKHVIDIN - Experience in Designing and Manufacturing All-Metal Vacuum Systems - "Advances in Vacuum Science and Technology", Ed. E. Thomas, Vol. I, 146, Pergamon Press Ltd., Oxford, 1960
- (65) P.M.S. BLACKETT, P.S.H. HENRY and E.K. RIDEAL - A Flow Method for comparing the Specific Heats of Gases, Part I. The Experimental Method- Proc. Roy. Soc.(London) A126, 319 (1930)
P.M.S. BLACKETT and P.S.H. HENRY - A Flow Method for comparing Specific Heats of Gases. Part II. The Theory of the Method- Proc. Roy. Soc.(London) A126, 333 (1930)
- (66) E.U. FRANCK und E. MEYER - Fluorwasserstoff. III. Spezifische Waerme und Assoziation im Gas bei niedrigem Druck - Z. Elektro-chem. 63, 571 (1959)
- (67) A.O. NIER - A Mass Spectrometer for Isotope and Gas Analysis - Rev. Sci. Instr. 18, 396 (1947)
- (68) A.E. CAMERON - Determination of the Isotopic Composition of Uranium - U.S. At. Energy Comm. TID-5213 (1950)
- (69) C.D. TABOR - Mass Spectrometry of Uranium Isotopic Measurements - International Atomic Energy Agency, Vienna, 5 (1960)
- (70) H. BIRKENFELD, G. HAASE und H. ZAHN - "Massenspektrometrische Isotopen-analyse" - VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1962
- (71) M. LOUNSBURY - The Natural Abundances of the Uranium Isotopes - Can. J. Chem. 34, 259 (1956)
- (72) L. DEBEVEC, V. KRAMER, J. MARSEL and V. VRSCAJ - Mass Spectrometric Measurements of UF_6 - "J. Stefan" Inst. Repts., Ljubljana, 5, 33 (1958)
- (73) J.M. HOLLANDER, I. PERLMAN and G.T. SEABORG - Table of Isotopes - Revs. Mod. Phys. 25 (2), 469 (1953)
- (74) J. BISHOP, D.F. DAVIDSON, P.B.F. EVANS, A.N. HAMER, J.A. MCKNIGHT and E.J. ROBBINS - The high-precision isotopic analysis of uranium hexafluoride - J. Sci. Instr. 38, 109 (1961)
- (75) W. BULANG und K.H. WELGE -- Eine Molekularstrahl-Ionenquelle fuer die massenspektrometrische Haeufigkeitsbestimmung der Uranisotope - Z. Instrumentenkunde 69, 176 (1961)
- (76) J.A. MCKNIGHT - A molecular beam ion source for hexanalysis with a mass spectrometer - U.K. At. Energy Auth. DEG Rept. 57(CA), (1959)

- (77) C. BRUNNEÉ - A new Mass Spectrometer for Precision Measurements of the ^{235}U ^{238}U Isotopic Ratio of UF_6 - Advances in Mass Spectrometry", Vol. 2, 230, Pergamon Press, Oxford, 1962
- (78) D. RAVAGNANI e I. JORDAN - Modificação do eixo de uma centrifuga para a separação de isotópos - Relatório N° 4090, Instituto de Pesquisas Tecnológicas, São Paulo, (1965)



B.G

